



**HAL**  
open science

# Influence de tensioactifs en atomisation assistée

Mathieu Alonzo

► **To cite this version:**

Mathieu Alonzo. Influence de tensioactifs en atomisation assistée. Physique [physics]. Université Grenoble Alpes [2020-..], 2022. Français. NNT: 2022GRALI043 . tel-03775141

**HAL Id: tel-03775141**

**<https://theses.hal.science/tel-03775141>**

Submitted on 12 Sep 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.

## THÈSE

Pour obtenir le grade de

### DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES

Spécialité : MEP : Mécanique des fluides Energétique, Procédés

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

**Mathieu ALONZO**

Thèse dirigée par **Alain CARTELLIER**, Directeur de Recherche,  
Université Grenoble Alpes  
et co-encadrée par **Zhujun HUANG**, Maître de Conférences,  
Grenoble INP

préparée au sein du **Laboratoire Laboratoire des Ecoulements  
Géophysiques et Industriels**  
dans l'**École Doctorale I-MEP2 - Ingénierie - Matériaux,  
Mécanique, Environnement, Énergétique, Procédés,  
Production**

### Influence de tensioactifs en atomisation assistée

### Effects of surfactant on air-assisted atomization of liquid jets

Thèse soutenue publiquement le **16 mai 2022**,  
devant le jury composé de :

**Monsieur Alain CARTELLIER**

DIRECTEUR DE RECHERCHE, CNRS délégation Alpes, Directeur de  
thèse

**Monsieur Thomas SEON**

CHARGE DE RECHERCHE HDR, CNRS délégation Paris Centre,  
Rapporteur

**Monsieur Christophe DUMOUCHEL**

DIRECTEUR DE RECHERCHE, CNRS délégation Normandie,  
Rapporteur

**Monsieur Jean-Philippe MATAS**

PROFESSEUR DES UNIVERSITÉS, Université Lyon1 - Claude Bernard,  
Examineur

**Madame Henda DJERIDI**

PROFESSEUR DES UNIVERSITÉS, Grenoble INP, Présidente



# Table des matières

<b>Remerciements</b>	<b>1</b>
<b>I État de l'art</b>	<b>2</b>
I.1 Atomisation assistée . . . . .	2
I.1.1 Les différents mécanismes à l'oeuvre dans la déstabilisation du jet liquide . . . . .	3
I.1.1.1 Instabilité de Kelvin-Helmholtz . . . . .	4
I.1.1.2 Instabilité de Rayleigh-Taylor . . . . .	6
I.1.1.3 Instabilité de flapping . . . . .	6
I.1.1.4 Instabilité de Rayleigh-Plateau . . . . .	8
I.1.1.5 Structure du jet liquide . . . . .	8
I.1.2 Populations de gouttes issues de la brisure . . . . .	11
I.1.3 Conclusion sur l'atomisation assistée . . . . .	14
I.2 Tensioactifs . . . . .	14
I.2.1 Mécanismes de transport vers une interface eau-air . . . . .	15
I.2.1.1 Équations de transport . . . . .	15
I.2.1.2 Transfert limité par diffusion et par cinétique d'adsorption . . . . .	17
I.2.1.3 Caractérisation de la dynamique d'un tensioactif par mesure de la tension de surface dynamique . . . . .	19
I.2.2 Phénomènes induits et induisants dus à des gradients de tension interfaciale . . . . .	21
I.2.3 Rhéologie d'une interface peuplée . . . . .	22
I.3 Influence des tensioactifs sur différents écoulements diphasiques . . . . .	27
I.3.1 Écoulements de nappes liquides . . . . .	27
I.3.2 Filaments liquides . . . . .	28
I.3.3 Injection pressurisée : influence du tensioactif sur la structure du jet et les tailles de gouttes . . . . .	29
I.3.4 Atomisation assistée . . . . .	30
I.3.5 Brisures de gouttes . . . . .	33
I.4 Objectifs de l'étude . . . . .	34
I.4.1 Paramètres d'intérêt régissant le transport d'un tensioactif en atomisation assistée . . . . .	34
I.4.2 Grandeurs expérimentales mesurées . . . . .	34
I.5 Plan de travail . . . . .	34
I.5.1 Choix des tensioactifs . . . . .	34
I.5.2 Choix des conditions d'injection hydrodynamiques . . . . .	36
<b>II Matériels et méthodes</b>	<b>39</b>
II.1 Présentation du dispositif expérimental . . . . .	39
II.1.1 Injecteur . . . . .	39
II.1.2 Circuits d'injection liquide et gaz . . . . .	39
II.1.3 Dosage des tensioactifs et processus de dépollution du circuit d'injection liquide . . . . .	42

II.1.3.1	Dosage . . . . .	42
II.1.3.2	Nettoyage du circuit d'injection liquide . . . . .	42
II.2	Caractérisation de la structure du jet liquide par imagerie rapide . . . . .	42
II.2.0.1	Acquisition des images par ombroscopie . . . . .	42
II.2.0.2	Analyse d'image . . . . .	43
II.3	Reproductibilité des grandeurs expérimentales mesurées en imagerie rapide . . . . .	48
II.4	Granulométrie . . . . .	51
II.4.1	Principe de fonctionnement de la diffraction laser . . . . .	51
II.4.2	Principe de fonctionnement de la sonde optique Doppler . . . . .	53
II.4.3	Intérêts et limitations des deux techniques . . . . .	55
II.4.4	Granulométrie par analyse d'image . . . . .	56
<b>III</b>	<b>Influence de tensioactifs sur la structure du jet</b> . . . . .	<b>57</b>
III.1	Caractérisation des tensioactifs utilisés . . . . .	57
III.1.1	Estimation des temps de transport des tensioactifs dans le jet liquide . . . . .	57
III.1.2	Tentatives de caractérisation des propriétés visco-élastiques des tensioactifs . . . . .	58
III.2	Visualisations qualitatives des effets des tensioactifs sur le jet liquide et le spray . . . . .	61
III.2.0.1	Changements de régime de brisure du jet liquide . . . . .	69
III.3	Analyse quantitative des effets des tensioactifs sur la structure du jet . . . . .	73
III.3.1	Longueur intacte et longueur de brisure . . . . .	73
III.3.1.1	Distributions de la longueur intacte . . . . .	73
III.3.1.2	Comportement de la longueur intacte moyenne avec les paramètres d'injection sans dopage . . . . .	78
III.3.1.3	Effets des tensioactifs sur la longueur intacte moyenne . . . . .	78
III.3.1.4	Écart-type de la longueur intacte . . . . .	82
III.3.1.5	Effets des tensioactifs sur la longueur de brisure . . . . .	85
III.3.1.6	Effets des tensioactifs sur la fréquence de brisure du jet . . . . .	87
III.3.1.7	Discussion . . . . .	90
III.3.2	Effets des tensioactifs sur l'angle d'ouverture du jet liquide et sur l'angle de spray . . . . .	95
III.3.2.1	Évolution de l'angle de jet avec les paramètres d'injection, en eau seule . . . . .	96
III.3.2.2	Évolution de l'angle de jet avec ajout de tensioactifs . . . . .	96
III.3.2.3	Évolution de l'angle de spray avec les paramètres d'injection, en eau seule . . . . .	100
III.3.2.4	Évolution de l'angle de spray avec ajout de tensioactifs . . . . .	100
III.3.2.5	Effets des tensioactifs sur les angles de jet et de spray : conclusion . . . . .	101
III.3.3	Effets des tensioactifs sur les longueurs de dard liquide et d'établissement du <i>flapping</i> . . . . .	105
III.3.3.1	Évolution des longueurs de dard liquide et d'établissement du <i>flapping</i> avec les paramètres d'injection en eau pure . . . . .	105
III.3.3.2	Évolution des longueurs de dard liquide et d'établissement de <i>flapping</i> avec ajout de tensioactifs . . . . .	105
III.3.4	Conclusion sur la structure du jet . . . . .	113
III.4	Effet des tensioactifs sur les fréquences des instabilités de surface et de <i>flapping</i> . . . . .	114
III.4.1	Évolution des fréquences d'instabilités en eau seule . . . . .	114
III.4.2	Instabilité de cisaillement . . . . .	114
III.4.3	Instabilité de <i>flapping</i> . . . . .	119
III.4.4	Conclusion des effets de tensioactifs sur les fréquences d'instabilités . . . . .	122
III.4.5	Synthèse des effets de tensioactifs sur la structure du jet liquide . . . . .	122

III.5 Comparaisons des temps d'adsorption aux temps de développement des instabilités et rupture : synthèse . . . . .	122
III.6 Conclusion . . . . .	125
<b>IV Étude de la sonde optique Doppler</b>	<b>127</b>
IV.1 Développement et amélioration des routines de traitement du signal . . . . .	127
IV.1.1 Détection et caractérisation de la phase liquide . . . . .	127
IV.1.2 Exploitation du signal Doppler pour la mesure de vitesses . . . . .	130
IV.1.3 Évaluation du flux à partir de mesures locales . . . . .	133
IV.2 Résultats . . . . .	134
IV.2.1 Détection et caractérisation de la phase liquide . . . . .	134
IV.2.2 Mesure de la fraction liquide . . . . .	137
IV.2.3 Mesures de la vitesse de gouttes . . . . .	137
IV.2.4 Mesures de cordes et tailles de gouttes . . . . .	138
IV.2.5 Mesures du flux liquide pour la validation de l'instrument . . . . .	139
IV.2.6 Évaluation du flux liquide, seconde méthode . . . . .	140
IV.3 Conclusion . . . . .	142
<b>V Évolution des caractéristiques du spray</b>	<b>143</b>
V.1 Considérations préliminaires . . . . .	143
V.1.1 Choix de la distance de mesure axiale . . . . .	143
V.1.2 Statistiques de gouttes . . . . .	145
V.2 Images du spray . . . . .	147
V.3 Granulométrie par imagerie . . . . .	147
V.4 Résultats obtenus par diffraction laser . . . . .	154
V.4.1 Reproductibilité des mesures . . . . .	154
V.4.2 Comportement de la taille moyenne avec la distance de mesure pour l'eau pure . . . . .	154
V.4.3 Évolution de la taille avec la distance de mesure : influence des tensioactifs . . . . .	158
V.4.4 Distributions de tailles de gouttes . . . . .	162
V.4.4.1 En eau pure . . . . .	162
V.4.4.2 Avec tensioactifs . . . . .	162
V.4.5 Évolution de la taille de gouttes moyenne avec la vitesse gaz . . . . .	166
V.4.5.1 En eau pure . . . . .	166
V.4.5.2 Évolution de la taille de gouttes moyenne avec la vitesse gaz : ajout de tensioactifs . . . . .	167
V.4.6 Mesures de tailles par diffraction laser, conclusion . . . . .	169
V.5 Sonde optique Doppler . . . . .	172
V.5.1 Évolution du spray avec les paramètres d'injection sans tensioactif . . . . .	172
V.5.1.1 Vitesses de gouttes . . . . .	172
V.5.1.2 Tailles de gouttes . . . . .	172
V.5.2 Influence des tensioactifs . . . . .	175
V.5.2.1 Évolution des vitesses . . . . .	175
V.5.2.2 Évolution des cordes et tailles de gouttes . . . . .	176
V.5.2.3 Corrélations cordes-vitesses . . . . .	176
V.5.2.4 Nombre d'inclusions par classes de tailles et vitesses de gouttes . . . . .	177
V.5.2.5 Flux par classes de tailles et vitesses de gouttes . . . . .	180
V.6 Discussion . . . . .	180
V.7 Conclusion . . . . .	189
<b>Conclusion générale et perspectives</b>	<b>191</b>

<b>Annexe A Annexes au chapitre III</b>	<b>195</b>
A.1 Images complémentaires de l'écoulement . . . . .	195
A.2 Évolution de la longueur de brisure de jet moyenne avec les conditions d'injection, pour de l'eau pure . . . . .	195
A.3 Rapports de temps caractéristiques de brisure du jet liquide et d'adsorption des tensioactifs . . . . .	195
A.4 Fréquences de brisure du jet liquide avec tensioactifs . . . . .	195
A.5 Fréquences de Kelvin-Helmholtz avec tensioactifs . . . . .	195
A.6 Fréquences de flapping avec tensioactifs . . . . .	195
<b>Annexe B Annexes au chapitre V</b>	<b>205</b>
B.1 Diamètre de Sauter volumique des particules obtenu par diffraction laser avec de l'eau pure . . . . .	205
B.2 Diamètre arithmétique moyen des particules obtenu par diffraction laser . .	205
B.3 Transition d'une distribution de cordes de gouttes à une distribution de tailles	208
B.4 Comparaisons des distributions de vitesses et cordes de gouttes avec et sans interpolation (chapitre V) . . . . .	210
<b>Bibliographie</b>	<b>210</b>
<b>Résumé de la thèse</b>	<b>219</b>

*Et la goutte aussi, et tout l'univers, et tout le vent  
Faut qu'tu vives complètement là dedans  
C'est ça qui faut, y a qu'ça qui faut  
Et qu'tu restes collé au vent, collé au vent, collé au vent  
Te fais pas disperser, te fais pas fragmenter, fais pas de concession  
Y a pas d'concession avec la vie*

*Alain Damasio*

# Remerciements

Ce travail de thèse n'aurait pu être réalisé sans l'expérience d'Alain Cartellier et de Zhujun Huang, auprès de qui j'ai beaucoup appris, tant sur le plan de la méthode scientifique que de la compréhension des phénomènes physiques en jeu. Je vous remercie de votre confiance, notamment en m'ayant proposé un sujet aussi complexe : l'atomisation en eau-air est déjà source de maux de têtes, ajouter des tensioactifs ne garantissait initialement pas d'obtenir des données expérimentales consistantes pour comprendre quoi que ce soit !

Je remercie également les membres du jury de thèse, en particulier les rapporteurs Thomas Séon et Christophe Dumouchel pour leurs retours très constructifs sur mon manuscrit, ainsi que Jean-Philippe Mattas, qui en plus de sa participation au jury a suivi mon travail annuellement à l'occasion des différents comités de suivi de thèse.

Une thèse expérimentale nécessitant beaucoup de support technique, je suis reconnaissant envers Laure Vignal et François Bonnel pour leur aide à la mise en place de certains instruments de mesure tout au long de la thèse. Anthony Lefebvre et Yann Mézui m'ont également apporté un soutien important concernant les travaux réalisés sur la sonde optique Doppler. Marie Le Merrer, enfin, m'a fourni une aide précieuse à la compréhension des phénomènes de transport et de rhéologie d'interfaces induits par les tensioactifs.

Merci également à mes encadrants de stage de M2, Benjamin Dollet et Philippe Marmottant, pour m'avoir donné l'envie d'aller plus loin dans le monde de la recherche et encouragé à faire une thèse.

Je pense également aux camarades doctorants, merci pour tous ces moments de rire et d'amitié au cours de ces années de thèse, et en particulier pour les prouesses footballistiques réalisées !

Merci enfin à ma famille et à mes amis qui ont été un soutien permanent : mes parents, mon frère toujours présent, Nicolas, Juliette, Mathilde R. et Emera pour leur amitié si précieuse.



# Chapitre I

## État de l'art

Ce premier chapitre a pour objectif d'aborder l'ensemble des problématiques physiques liées aux phénomènes d'atomisation assistée d'une part, et rhéologiques induits par les tensioactifs d'autre part, en mettant en perspective les recherches menées sur ces deux sujets. Dans un premier temps, ce chapitre aborde l'atomisation assistée, permettant l'appréhension globale du sujet. D'abord par la compréhension des mécanismes à l'oeuvre dans la déstabilisation du jet liquide menant à sa rupture, puis par un état des connaissances de l'évolution de la structure du jet liquide et du spray avec les paramètres de contrôle. Dans un second temps sont introduits les mécanismes de transport des tensioactifs vers une interface eau-air et les modèles théoriques associés. Puis les effets induits par ces molécules sont passés en revue. Enfin, l'influence des tensioactifs sur différents écoulements diphasiques (jets liquides, jets pressurisés, atomisation) sont analysés au travers des résultats de différentes recherches portant sur le sujet, et permettent de mieux appréhender les phénomènes physiques en jeu. Finalement, ce chapitre s'attachera à introduire les objectifs de l'étude, et tout particulièrement le choix des tensioactifs et des conditions d'injection de l'atomisation afin de maximiser les effets potentiels du dopage sur le phénomène physique.

### I.1 Atomisation assistée

Les sprays sont utilisés dans une multitude de domaines tels que le médical, l'agriculture, le traitement de surfaces, le refroidissement ou encore la combustion. Dans le cas des moteurs à combustion interne par exemple, ils permettent de convertir l'énergie d'un carburant stocké sous forme liquide en une énergie thermique par combustion. Pour cela, la phase liquide doit être fragmentée en fines gouttes afin d'augmenter l'aire interfaciale à volume injecté constant, et donc d'accélérer la réaction. Il est donc nécessaire d'atomiser le liquide en gouttelettes aussi fines que possibles, et réparties de façon homogène dans la chambre de combustion. Différents types d'atomiseurs existent, pour des applications différentes. Une première famille largement utilisée dans les moteurs à combustion interne est l'atomisation sous pression (avec différentes sous-catégories d'injecteurs), l'atomisation par impact du jet liquide sur un disque rotatif, utilisée en agriculture pour la pulvérisation de pesticides, l'atomisation électrostatique ou ultrasonique pour l'impression, les sprays médicaux, le traitement de surfaces etc. Ces techniques créent des tailles de gouttes variées, et sont donc utilisées pour des applications différentes. Elles permettent en revanche la pulvérisation d'une phase unique. Dans le cas d'un moteur fusée, il est nécessaire d'embarquer dans l'engin le carburant mais aussi le comburant car la combustion intervient dans un milieu dépourvu d'oxygène (à l'inverse d'un moteur de voiture qui utilise directement l'oxygène de l'air ambiant), et de les atomiser ensemble dans la chambre de combustion. D'où l'intérêt de l'atomisation assistée, qui permet l'injection et le mélange des deux phases. De plus, l'efficacité d'un moteur fusée dépendra de la vitesse d'éjection des gaz dans la tuyère, qui doit être maximale pour maximiser la poussée. Cela dépend de la combustion dont le rendement doit être optimal. Pour ce faire, l'association d'hydrogène

et d'oxygène liquide (LH2/LOX) est souvent utilisée pour une application aux moteurs fusées, car elle maximise le rendement de la combustion (évalué par l'impulsion spécifique, qui est la poussée obtenue par unité de carburant consommé). D'autre part, la conception de l'injecteur est également cruciale, étant donné que la qualité de l'atomisation impacte directement la qualité de la combustion. Par exemple, un jet liquide mal fragmenté qui présente de grosses structures liquides non atomisées entraînera une plus faible surface d'échange pour la réaction de combustion, et donc un rendement plus faible qu'un jet bien atomisé en fines gouttelettes.

Dans cette problématique, la compréhension du phénomène physique d'atomisation est cruciale. Cependant, l'atomisation avec combustion fait intervenir différents aspects très complexes (hydrodynamique, chimique, thermodynamique). C'est pourquoi le phénomène physique sous son aspect hydrodynamique seul est depuis longtemps étudié, afin de mieux comprendre le "simple" processus de fragmentation d'un jet liquide en spray. Globalement, la rupture de la phase liquide résulte d'une compétition entre énergie cinétique (ici apportée par le gaz) et les forces de cohésion du liquide (viscosité et tension de surface). Parmi les méthodes d'atomisation assistée, se distinguent l'atomisation à mélange interne (les fluides sont mélangés dans un volume fermé avant d'être expulsés dans l'air ambiant) et externe (le processus de mélange a lieu directement dans l'air ambiant). Nous nous intéressons dans cette étude aux atomiseurs à mélange externe. Différentes géométries sont par ailleurs étudiées pour comprendre les mécanismes qui conduisent à la déstabilisation du jet liquide : la géométrie plane (Figure I.1a) où les écoulements eau et air sont injectés en nappes parallèles, et la géométrie coaxiale (b) : l'injecteur liquide est constitué d'un tube central entouré d'un tube coaxial, l'injecteur gaz.

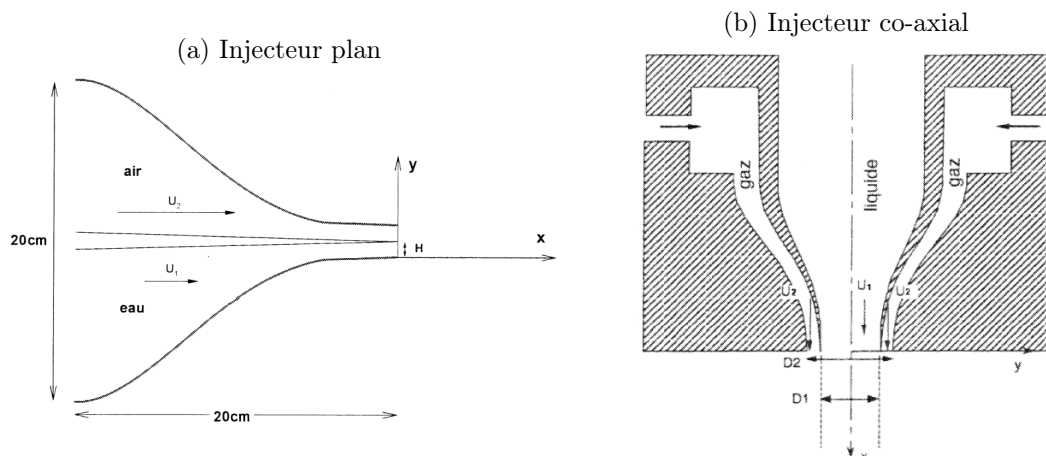


FIGURE I.1 – Injecteurs plan (a) et coaxial (b) utilisés par Hong [35] et Marmottant & Villermaux [61] dans leurs thèses.

Nous proposons dans cette section une synthèse de l'état de l'art de la littérature concernant l'atomisation.

### I.1.1 Les différents mécanismes à l'oeuvre dans la déstabilisation du jet liquide

L'atomisation d'un jet liquide en gouttes par un courant gaz parallèle résulte d'une succession d'instabilités à l'oeuvre à l'interface du jet liquide. Cette section a pour rôle de présenter ces instabilités, ainsi que les différentes lois d'échelles associées connues de la littérature.

### I.1.1.1 Instabilité de Kelvin-Helmholtz

L'instabilité ayant lieu à l'interface de deux écoulements parallèles, avec des vitesses et des densités de fluides différentes, est l'instabilité de *Kelvin-Helmholtz*. C'est une instabilité inertielle générant un cisaillement à l'interface et la formation de vagues (Figure I.2). Aussi nommée instabilité primaire en atomisation assistée, elle a lieu dès la sortie de l'injecteur lorsque les deux phases - liquide et gaz - se rejoignent. Par ailleurs, ce principe physique entraîne le mélange des deux phases et contribue à l'atomisation de la phase liquide.

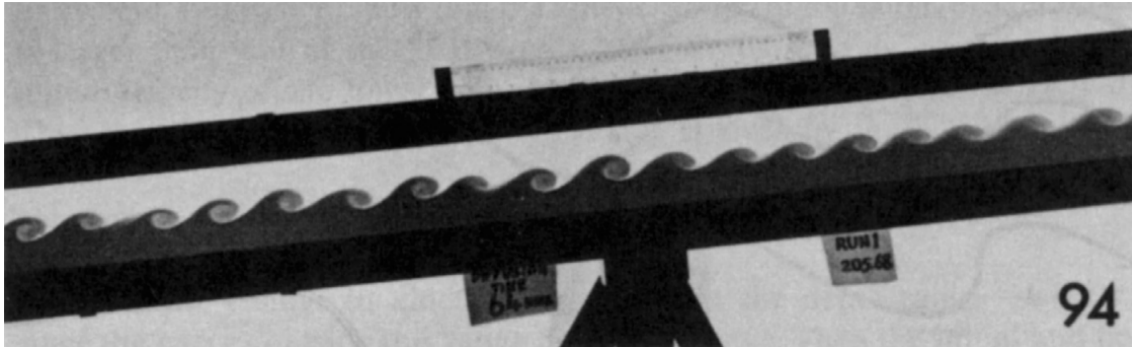


FIGURE I.2 – Instabilité de Kelvin-Helmholtz obtenue par inclinaison d'un canal contenant deux liquides de densités différentes, générant des écoulements aux vitesses différentes dans chaque phase et un cisaillement à leur interface (Thorpe [86]).

Il est possible de prédire l'évolution des perturbations liées à ce phénomène par une analyse de stabilité linéaire, dans le but d'obtenir une relation de dispersion des caractéristiques de l'onde (la pulsation  $\omega$  et le nombre d'onde  $k$ ) fonction des paramètres de l'expérience. Pour ce faire, chaque grandeur physique des équations décrivant l'écoulement est décomposée en un terme moyen et une perturbation spatio-temporelle de la forme (en deux-dimensions avec une perturbation se propageant perpendiculairement à l'écoulement) :

$$A(x, y, t) = A(y) + \tilde{A}(y)e^{i(kx - \omega t)} \quad (\text{I.1})$$

où  $x$  et  $y$  sont les directions parallèle et orthogonale à l'écoulement respectivement. Les analyses de stabilité de la littérature présentées ci-après sont temporelles, c'est-à-dire que le nombre d'onde  $k$  est un paramètre réel, et l'on recherche des solutions complexes  $\omega(k)$ . Pour  $k$  fixé, les solutions telles que la partie imaginaire  $\text{Im}(\omega)$  est positive correspondent à une perturbation amplifiée, l'écoulement est instable. Et le mode le plus amplifié est  $\max(\text{Im}(\omega))$ . A l'inverse, l'analyse spatiale consiste à fixer  $\omega$  réel et chercher des solutions  $k(\omega)$  complexes. L'écoulement est instable lorsque  $\text{Im}(k) < 0$ . Physiquement, la longueur d'onde de l'instabilité est  $\lambda = 2\pi/k$ , et sa fréquence  $f = \text{Re}(\omega)/2\pi$ . L'analyse de stabilité temporelle est souvent préférée car elle présente des calculs moins complexes que l'analyse spatiale. Cependant, l'analyse spatiale est plus pertinente car l'interface de l'écoulement diphasique évolue fortement spatialement. Par ailleurs, les analyses de stabilité sont la plupart du temps linéaires car l'analyse non-linéaire est également trop complexe. Or, une instabilité de type Kelvin-Helmholtz qui se développe en atomisation par exemple présente effectivement un développement linéaire dans la région proche injecteur, mais devient vite non-linéaire plus en aval.

Chandrasekhar [13] a réalisé une première analyse de stabilité linéaire de l'instabilité de Kelvin-Helmholtz pour un écoulement diphasique parallèle, avec discontinuité des vitesses entre les deux phases et en considérant chaque phase comme semi-infinie. La relation de dispersion obtenue est :

$$\frac{\omega}{k} = \frac{\rho_L U_L + \rho_G U_G}{\rho_L + \rho_G} + i \frac{\rho_L \rho_G}{\rho_L + \rho_G} (U_G - U_L) \quad (\text{I.2})$$

où  $\rho_L$  et  $\rho_G$  sont les densités liquide et gaz,  $U_L$  et  $U_G$  les vitesses d'injection liquide et gaz respectivement. Pour un écoulement perpendiculaire au champ gravitationnel, la prise en compte de ce dernier donne :

$$\frac{\omega}{k} = \frac{\rho_L U_L + \rho_G U_G}{\rho_L + \rho_G} + i \left[ \frac{\rho_G - \rho_L}{\rho_G + \rho_L} \frac{g}{k} - \frac{\rho_L \rho_G}{(\rho_L + \rho_G)^2} (U_G - U_L)^2 \right]^{1/2} \quad (\text{I.3})$$

L'écoulement est instable pour  $g(\rho_G^2 - \rho_L^2) < k \rho_L \rho_G (U_G - U_L)^2$ , i.e. lorsque la différence de vitesses est grande, ou l'écart des densité faible. Ou encore pour une valeur de nombre d'onde élevée. Mais ces analyses supposent une discontinuité de vitesse entre les deux phases, et présentent un pauvre accord avec les mesures expérimentales réalisées en atomisation plane notamment. Dans le cas avec raccord de vitesse et prise en compte de l'épaisseur de vorticit  dans la phase gaz  $\delta_w$  (cf. Figure I.3), Rayleigh [75], Raynal [76] et Villermaux [90] ont montr  que le mode le plus amplifi  est caract ris  par :

$$k \approx \frac{\rho_G^{1/2}}{\rho_L} \frac{1}{\delta_w} \quad \omega \approx \frac{\rho_G U_C}{\rho_L \delta_w} \quad (\text{I.4})$$

avec  $\delta_w$  l' paisseur de vorticit  gaz et  $U_C$  la vitesse interfaciale telle que [24] :

$$U_C = \frac{\sqrt{\rho_L} U_L + \sqrt{\rho_G} U_G}{\sqrt{\rho_L} + \sqrt{\rho_G}} \quad (\text{I.5})$$

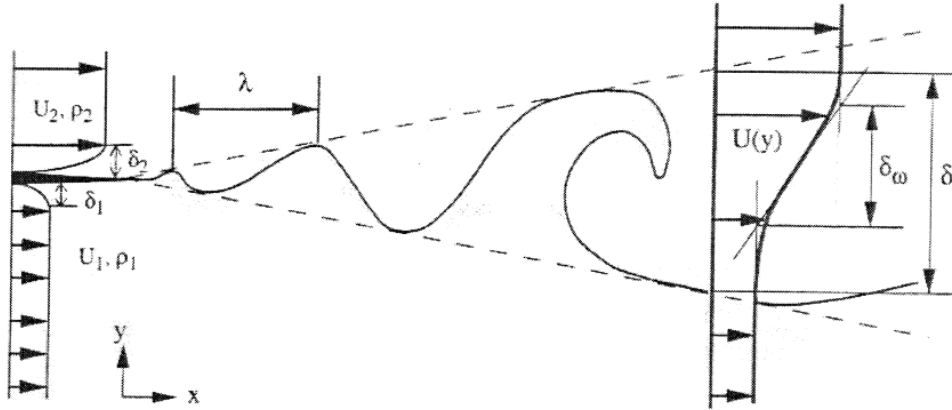


FIGURE I.3 – Sch ma de la couche de m lange pour l'analyse de stabilit  r alis e par Raynal [76], avec prise en compte de l' paisseur de vorticit  et raccord de vitesse   l'interface. Ici  $U_1=U_L$ ,  $U_2=U_G$  et  $\rho_1=\rho_L$ ,  $\rho_2=\rho_G$ .

Les pr dictiones de Raynal [76] pour l'atomisation plane, et par la suite celles de Marmottant & Villermaux [61] (g om trie co-axiale) et Matas *et al.* [65] qui prennent en compte le d ficit de vitesse induit par la l vre s paratrice   l'injection des deux phases, ont montr  un bon accord avec les r sultats exp rimentaux. Raynal [76] montre notamment avec cette analyse que l' paisseur de vorticit  contr le l'instabilit  de cisaillement. Cependant, les fr quences mesur es en configuration co-axiale  taient trois   quatre fois plus importantes que celles pr dit es. Une nouvelle analyse en configuration co-axiale et avec prise en compte de la viscosit  a  t  r alis e par Matas *et al.* [66]. Trois m canismes en comp tition dans le d veloppement de l'instabilit  ont  t  mis en  vidence : un mode absolu contr l  par la tension de surface, un mode absolu contr l  par confinement et un mode convectif. La fr quence de l'instabilit  de cisaillement  volue diff remment d'un r gime   l'autre, et des lois d' chelles ont  t  propos es pour chaque mode. Les pr dictiones sont coh rentes avec les mesures exp rimentales pour les r gimes d'injection test s. Les limites de l' tude ont  t  discut es par ailleurs : l'analyse de stabilit  est d'une part bas e sur un  coulement

parallèle, bien que les profils de vitesses et les épaisseurs des deux phases varient avec la distance axiale, et est limitée à des perturbations axi-symétriques d'autre part alors que l'écoulement peut être contrôlé par des perturbations asymétriques. L'influence de l'épaisseur de vorticit  sur l'instabilit  de cisaillement a  galement  t   tudi e par Marmottant & Villermaux [61], qui ont notamment montr  que le d veloppement de cette instabilit  est ind pendant de la tension de surface lorsque le nombre de Weber bas  sur l' paisseur de vorticit   $We_\delta = \rho_G U_G^2 \delta / \sigma$  d passe une valeur seuil  $We_{\delta \text{ crit}} \approx (\rho_G / \rho_L)^{1/2}$ .

### I.1.1.2 Instabilit  de Rayleigh-Taylor

(a) Ligaments r sultants de l'instabilit  de Rayleigh-Taylor



(b) Gouttes form es suite au pincement des ligaments



FIGURE I.4 – Formation de ligaments puis de gouttes   l'interface d'un jet liquide atomis  par un jet gaz co-axial (Marmottant & Villermaux [61]).

L'instabilit  de Reyleigh-Taylor est une instabilit  transverse qui se d veloppe   la cr te des vagues form es par l'instabilit  de cisaillement. Des ligaments se forment (Figure I.4a), puis sont  tir es par le courant gaz avant de rompre en formant des gouttes (b). Ce ph nom ne "d' pluchage" du jet a d'abord  t  observ  par Lasheras *et al.* [47] en configuration coaxiale, avant d' tre approfondi par Marmottant & Villermaux [61], Varga *et al.* [88] et Hong *et al.* [34]. Pour une g om trie plane, nous pouvons notamment citer les travaux de Ben Rayana [7]. La formation des ligaments advient lorsque l'amplification de l'instabilit  de cisaillement est suffisamment importante, condition atteinte   partir d'une vitesse gaz d'environ 20 m/s. Marmottant & Villermaux [61] attribuent la cause de l'instabilit  de Rayleigh-Taylor et la formation de ligaments   l'acc l ration verticale (perpendiculaire   l' coulement moyen) des ondes de l'instabilit  primaire, qui g n re une acc l ration de l'interface alternativement vers les phases liquide et gaz. Lorsque l' l vation d'une vague au dessus du liquide est maximale, l'instabilit  est suffisamment amplifi e pour conduire   la formation d'un ligament. La loi d' chelle propos e par Marmottant & Villermaux [61] - g om trie coaxiale - pour la longueur d'onde du mode le plus amplifi  est :

$$\lambda_1 \propto 2,8 \delta W e_\delta^{-1/3} \left( \frac{\rho_G}{\rho_L} \right)^{-1/3} \quad (\text{I.6})$$

o   $\delta$  est l' paisseur de vorticit  gaz, et  $We_\delta$  le nombre de Weber bas  sur cette derni re.  $\sigma$  la tension de surface du liquide et  $U_G$  la vitesse gaz.

Hong *et al.* [34] attribuent quant   eux ce ph nom ne   l'acc l ration axiale (parall le   l' coulement moyen) des cr tes de vagues de l'instabilit  Kelvin-Hemholtz par le courant gaz. La loi d' chelle obtenue est n anmoins tr s similaire :

$$\lambda_1 \propto 2\pi \delta W e_\delta^{-1/2} \left( \frac{\rho_G}{\rho_L} \right)^{-1/4} \quad (\text{I.7})$$

### I.1.1.3 Instabilit  de flapping

Les gouttes issues de la brisure des ligaments ne repr sentent qu'une partie du spray global. En fait, une population de gouttes plus ou moins importante - en fonction des

régimes d'injection - est issue de la brisure du jet liquide non épluché. Plus en aval de la formation des vagues de cisaillement et ligaments, le jet liquide encore intact peut présenter une instabilité large-échelle (*flapping*), caractérisée par un mouvement d'oscillation radiale de grande amplitude (Figure I.5).

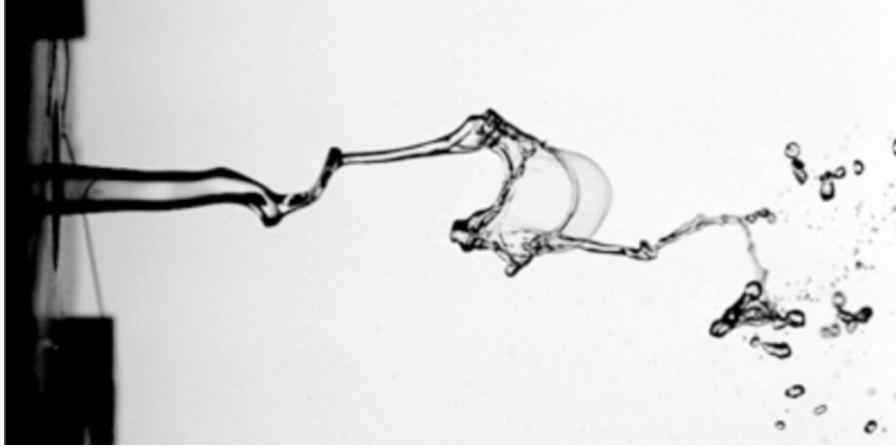


FIGURE I.5 – Instabilité de *flapping* (Delon *et al.* [23]).

Delon *et al.* [23] ont montré que la fréquence de cette instabilité peut être contrôlée par deux modes (Figure I.6). Un premier par une instabilité de cisaillement asymétrique, et dans ce cas la fréquence évolue linéairement avec la vitesse gaz. L'oscillation radiale du jet résulte d'une amplification de l'instabilité de cisaillement asymétrique. Dans le second régime, la fréquence est indépendante de la vitesse gaz et l'instabilité n'est plus contrôlée par l'instabilité de cisaillement du fait d'une longueur d'onde trop faible pour déstabiliser le jet au delà du rayon de l'injecteur liquide. Ces résultats ont été obtenus pour une vitesse liquide variant de 0,17 à 0,75 m/s et différentes géométries d'injecteur (voir légende de la Figure I.6).

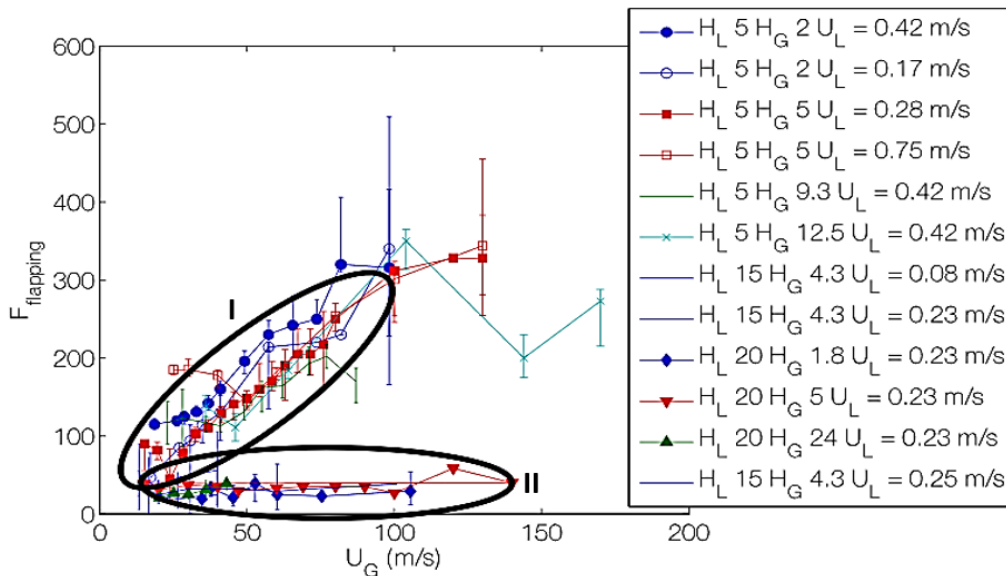


FIGURE I.6 – Évolution de la fréquence de *flapping* (Hz) en fonction de la vitesse d'injection gaz, pour différentes géométries d'injection et vitesses liquides. I. Fréquence croissante avec  $U_G$ , II. Fréquence indépendante de  $U_G$ . Delon *et al.* [23].

Odier *et al.* [71] ont réalisé une étude numérique du *flapping* en configuration co-axiale. Il apparaît que le rapport des pressions dynamiques ( $M = \frac{\rho_G U_G^2}{\rho_L U_L^2}$ ), habituellement utilisé pour décrire l'évolution du processus d'atomisation avec les vitesses d'injection liquide et

gaz, ne suffit pas à lui seul pour décrire l'évolution du phénomène de *flapping*. Ce sont les nombres de Weber et Reynolds gaz qui sont déterminants dans le développement du *flapping* :

$$We_G = \frac{\rho_G U_G^2 H_G}{\sigma} \quad (I.8a)$$

$$Re_G = \frac{\rho_G U_G H_G}{\mu_G} \quad (I.8b)$$

Cependant, aucune tendance claire des caractéristiques de *flapping* avec ces paramètres n'a été mise en évidence, notamment parce que seulement trois valeurs de vitesses gaz ont été utilisées.

#### I.1.1.4 Instabilité de Rayleigh-Plateau

Prenons pour commencer le cas d'un jet liquide sans assistance gaz. Lorsque le jet subit une réduction locale de son rayon de courbure, cela entraîne une augmentation de pression dans les zones contractées. Il s'en suit un effet de vidange capillaire par pression de Laplace des zones avec surpression vers les zones de plus faible pression. Ce qui conduit à réduire d'avantage le diamètre de la région à forte pression et amplifier le phénomène (les deux effets se conjuguent), jusqu'à la rupture du jet. C'est l'instabilité de Rayleigh-Plateau. Les tailles de gouttes résultantes de la brisure sont de l'ordre du diamètre du jet liquide.

#### I.1.1.5 Structure du jet liquide

Les mécanismes vus ci-dessus génèrent des jets liquides structurés différemment. La brisure d'un jet atomisé par un courant gaz pouvant résulter d'un ou plusieurs de ces mécanismes. Pour une géométrie co-axiale, Chigier & Farago [16] ont proposé une cartographie des différents régimes d'atomisation du jet liquide, introduite en Figure I.7. La Figure I.8 fournit des images d'écoulements associés à chaque mode.

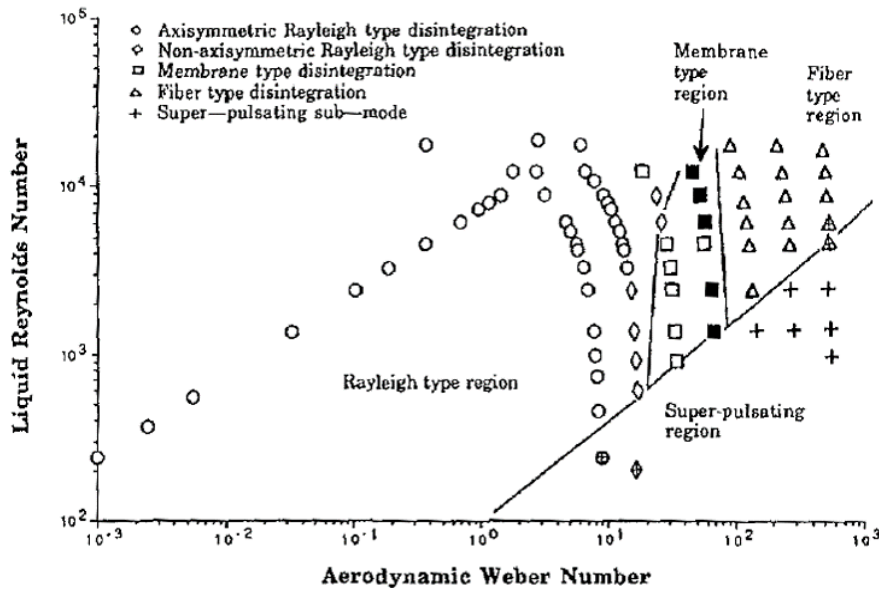


FIGURE I.7 – Cartographie des modes d'atomisation d'un jet liquide par assistance gaz co-axiale, d'après Chigier & Farago [16].

Les paramètres déterminants sont le nombre de Reynolds liquide et le nombre de Weber aérodynamique, tels que :

$$Re_L = \frac{\rho_L U_L H_L}{\mu_L} \quad (I.9a)$$

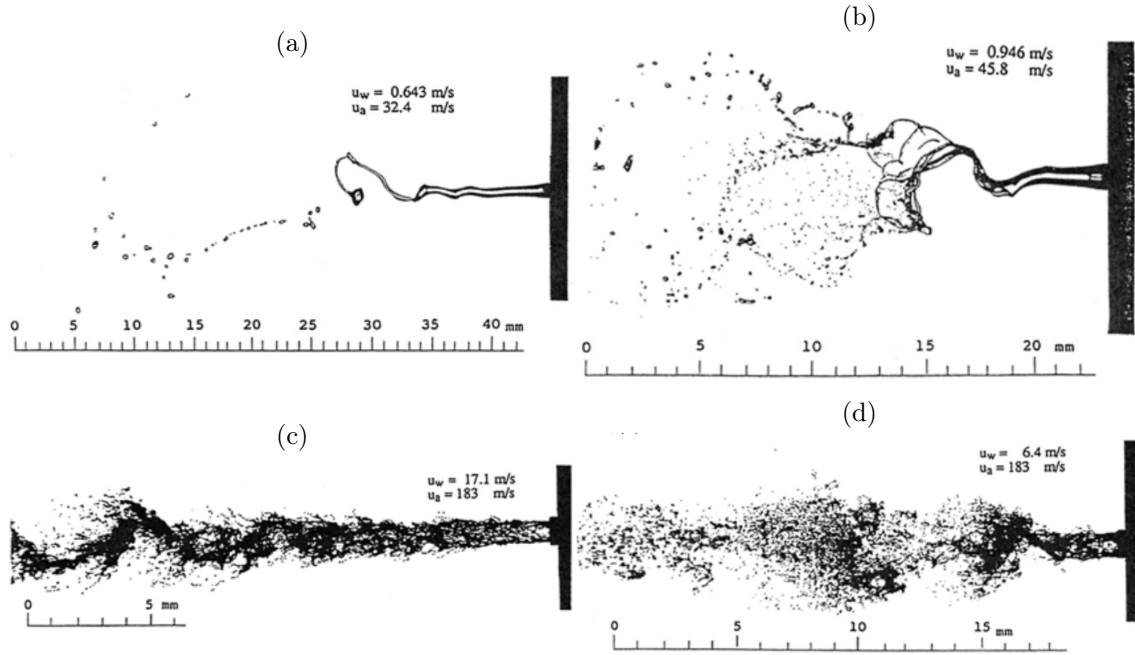


FIGURE I.8 – Régimes d’atomisation observés par Chigier & Farago [16] : (a) Rayleigh non-axisymétrique, (b) brisure membrane, (c) mode fibre, (d) Rayleigh non axisymétrique, mode super-pulsé. D’après Chigier & Farago [16].

$$We_a = \frac{\rho_G(U_G - U_L)^2 H_G}{\sigma} \quad (\text{I.9b})$$

Le premier régime - *Rayleigh* - correspond au mécanisme Rayleigh-Plateau à l’oeuvre pour un jet liquide sans assistance gaz. Il correspond à une brisure du jet liquide sans perte de masse liquide en amont de la brisure, mais la longueur de brisure est réduite due à l’entraînement gaz comparé à un jet liquide non assisté. Le sous-mode non-axisymétrique entraîne le *flapping* comme nous venons de le voir (cf. I.1.1.3), dont les structures détachées subissent une atomisation secondaire. Le second mode - *membrane* - a lieu aux nombres de Weber supérieurs. L’extrémité du jet liquide est fortement étirée, avant de rompre en fines gouttelettes (aussi appelé "bag break-up"). Aux plus grands nombres de Weber, le mode *fibre* correspond à l’apparition de l’épluchage du jet par formation de ligaments à l’interface et de leurs brisures (mécanisme de Rayleigh-Taylor, cf. I.1.1.2). Ce mode génère des gouttes de faibles tailles comparé aux autres modes. Deux sous-modes existent, le mode *fibre* (ou "stripping") et le mode *super-pulsé*. Le mode super-pulsé présente un jet brisé à haute fréquence.

Les grandeurs d’intérêt souvent étudiées dans la littérature pour caractériser le jet liquide sont la longueur de dard ( $L_{\text{dard}}$ ) et la longueur de brisure ( $L_B$ , nommée aussi longueur intacte  $L_I$ ). La première correspond à la longueur de la zone spatiale toujours liquide au cours du temps (sans inclusion gaz), aussi appelée cœur liquide. La seconde correspond à la longueur de jet rattachée à l’injecteur liquide. Précisément, la longueur de brisure est la distance à laquelle le jet liquide se brise, tandis que la longueur intacte est la longueur de jet encore intact à chaque instant. Dans les recherches existantes, les deux grandeurs sont souvent confondues. En atomisation plane, Raynal [76] propose un modèle pour la longueur de dard basé sur l’équilibre des pressions dynamiques du liquide et de la turbulence gaz, tel que :

$$\frac{L_{\text{dard}}}{H_L} = \frac{6}{\sqrt{M}} \quad (\text{I.10})$$

où  $M$  est le rapport des pressions dynamiques  $M = \frac{\rho_G U_G^2}{\rho_L U_L^2}$ . Un bon accord est obtenu jusqu’à



$M = 30$ , puis la longueur de dard ne varie plus au delà, comme montré ultérieurement par Ben Rayana [7]. En configuration co-axiale, Leroux *et al.* [52] proposent une loi d'échelle proche :

$$\frac{L_{\text{dard}}}{H_L} = \frac{10}{M^{0,3}} \quad (\text{I.11})$$

Pour une géométrie d'injecteur variée sur des plages  $H_L \in [0, 4-2] \text{ mm}$ ,  $H_G \in [0, 5-8] \text{ mm}$ , et des vitesses  $U_L \in [0-7, 5] \text{ m/s}$ ,  $U_G \in [15-250] \text{ m/s}$ .

Concernant la longueur de brisure, Eroglu *et al.* [29] obtiennent pour une configuration co-axiale une loi d'échelle empirique dépendante du Reynolds liquide et du Weber aérodynamique :

$$\frac{L_I}{H_L} = 0,66 W e_a^{-0,4} R e_L^{0,6} \quad (\text{I.12})$$

Un bon accord a été obtenu avec les mesures expérimentales, pour une géométrie  $H_L = 1 \text{ mm}$ ,  $H_G = 4,68 \text{ mm}$ , et des vitesses  $U_L \in [1, 1-18] \text{ m/s}$ ,  $U_G \in [0, 5-180] \text{ m/s}$ . La longueur de brisure dépend de la géométrie de l'injecteur, des vitesses d'injection, de la densité des fluides et de la tension de surface du liquide.

L'angle d'ouverture du spray est également une caractéristique importante du processus d'atomisation. Leroux *et al.* [52] modélisent l'angle d'ouverture du spray pour une géométrie coaxiale. Le modèle est basé sur l'hypothèse que la trajectoire des gouttes résulte d'une composante horizontale qui est la vitesse de convection  $U_C$  (équation I.5) et d'une composante verticale, qui est le produit du taux de croissance temporel et de l'amplitude de l'instabilité de cisaillement. L'angle  $\theta$  correspondant à cette trajectoire est relatif à l'interface du jet, lui même possédant un angle moyen  $\beta/2$  avec l'axe de l'injecteur. L'angle ainsi défini relativement à l'interface s'exprime :

$$\tan(\theta/2) \propto \frac{\omega_i \lambda}{U_C} \quad (\text{I.13})$$

Après estimation du taux de croissance  $\omega_i$  et de la longueur d'onde  $\lambda$  - obtenus par analyse de stabilité linéaire pour un profil de vitesse type Kelvin-Helmholtz avec discontinuité de vitesse à l'interface dans la phase gaz (cf. section I.1.1.1) -, et avoir ramené l'angle de trajectoire des gouttes à l'axe de l'injecteur et non plus à l'interface du jet, Leroux *et al.* [52] obtiennent une formulation de l'angle de jet uniquement dépendante du rapport des pressions dynamiques  $M$  :

$$\tan(\alpha/2) = \frac{0,72\sqrt{M}(1-0,1\sqrt{M})}{0,06M + \sqrt{M} + 1} \quad (\text{I.14})$$

Les angles prédits par l'équation I.14 sont proches des mesures expérimentales pour des valeurs de  $M < 100$ .

Delon [22] a réalisé des mesures d'angle de spray (en configuration co-axiale également), en faisant varier la géométrie de l'injecteur ( $H_L = 5-20 \text{ mm}$ ,  $H_G = 2-12,5 \text{ mm}$ ), ainsi que les vitesses liquide et gaz ( $U_L = 0,2-1 \text{ m/s}$ ,  $U_G = 20-130 \text{ m/s}$ ). Tout d'abord à vitesse gaz fixée à  $40 \text{ m/s}$  et une géométrie  $H_L = 5 \text{ mm}$ ,  $H_G = 2 \text{ m/s}$ , l'angle décroît avec la vitesse liquide. Concernant l'effet de la vitesse gaz, l'angle de spray présente une évolution croissante avec  $U_G$  jusqu'à  $40-50 \text{ m/s}$  suivie d'une décroissance au delà de ces vitesses, comme ce qu'indiquent les résultats de Leroux *et al.* [52]. Seules les mesures avec un fort diamètre d'injecteur liquide présentent un angle maximal plus élevé, atteint pour  $U_G = 70 \text{ m/s}$ .

Delon [22] a mis en évidence que l'angle de spray est gouverné par différents mécanismes selon la vitesse gaz : la zone de croissance avec  $U_G$  correspond à un pilotage de l'angle d'ouverture du spray par le taux de croissance de l'instabilité de *flapping*, tandis que la zone de décroissance correspond à un pilotage par l'épluchage de l'interface du jet.

### I.1.2 Populations de gouttes issues de la brisure

Le spray évolue avec les conditions d'injection d'une part, mais également dans l'espace. Les différentes populations de tailles au sein du spray peuvent être caractérisées par une distribution de tailles  $P(d)$ . De la distribution peuvent être déduits différents diamètres moyens, dont l'expression est :

$$D_{ab} = \left[ \frac{\int_{d_{min}}^{d_{max}} d^a \left( \frac{\delta N}{\delta d} \right) \delta d}{\int_{d_{min}}^{d_{max}} d^b \left( \frac{\delta N}{\delta d} \right) \delta d} \right]^{\frac{1}{a-b}} = \left[ \frac{\int_{d_{min}}^{d_{max}} d^a P(d)}{\int_{d_{min}}^{d_{max}} d^b P(d)} \right]^{\frac{1}{a-b}} \quad (\text{I.15})$$

où  $d_{min}$ ,  $d_{max}$  sont les diamètres extrêmes de la distribution de tailles. L'intégration continue peut se transformer en intégrale discrète à partir de mesures expérimentales :

$$D_{ab} = \left[ \frac{\sum_i N_i d^a}{\sum_i N_i d^b} \right]^{\frac{1}{a-b}} \quad (\text{I.16})$$

avec  $N$  le nombre de gouttes de classe  $d$ . Le  $D_{10}$  correspond au diamètre moyen des gouttes, tandis que le  $D_{32}$  (ou  $SMD$ , *Sauter Mean Diameter*) sera plus souvent utilisé pour les applications en combustion puisqu'il traduit un rapport volume-surface.

En atomisation plane, Hong *et al.* [34] mesurent l'évolution du diamètre de Sauter des gouttes issues de l'épluchage de l'interface avec la vitesse d'injection gaz, et proposent un modèle pour la taille des gouttes, qui évolue en  $D_{32} \propto U_G^{-5/4}$ . Les mesures sont réalisées par sonde optique à une distance de 1,5 fois la longueur de dard et rapport des pressions dynamiques  $M$  constant. La Figure I.9 montre la comparaison des mesures de Hong *et al.* [34] et complétées par Ben Rayana [7] au modèle, et donne un très bon accord sur la pente.

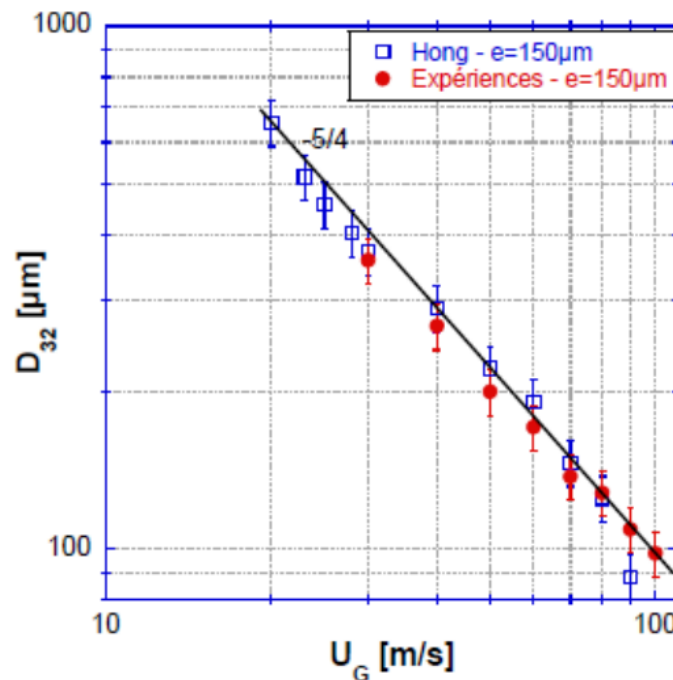


FIGURE I.9 – Comparaisons des tailles de gouttes mesurées en atomisation plane par Hong *et al.* [34] et Ben Rayana [7] au modèle de Hong *et al.* [34]. Distance de mesure :  $x/H_L=1,5=L_{dard}$ , transversale :  $y/H_L=0,5$ ,  $M=16$ .

En configuration coaxiale, Marmottant & Villermaux [61] montrent que la taille moyenne des gouttes issues de la rupture des ligaments est proportionnelle à la longueur d'onde de l'instabilité transverse ( $\lambda_{\perp}$ ). Elle dépend par ailleurs de la vitesse gaz, avec une évolution en  $d_{10} \propto U_G^{-n}$ , avec  $n=1$  [60]. Varga *et al.* [88] trouvent également cette valeur de coefficient  $n$ , mais Hong [35] obtient plutôt  $n=0,72-1,91$ . Villermaux [91] a établi que la distribution

de tailles des gouttes issues de l'épluchage est très bien décrit par une distribution Gamma, qui est fonction des caractéristiques des ligaments formés à l'interface du jet.

Mais qu'en est-il de la taille des gouttes issues de la brisure du jet liquide et non de l'épluchage? Pour un injecteur à géométrie coaxiale avec swirl (i.e. les fluides sont injectés avec une composante de vitesse tangentielle), Suyari & Lefebvre [84] mesurent le SMD des gouttes en aval de la brisure du jet par diffraction laser. Ils déduisent de leurs résultats que le paramètre qui gouverne au premier ordre la taille des gouttes est le rapport des pressions dynamiques liquide-gaz  $M$ . Lorsque la vitesse d'injection liquide est augmentée, le SMD augmente jusqu'à atteindre un maximum puis diminue pour des vitesses supérieures. La vitesse liquide à laquelle ce maximum est atteint augmente lorsque la vitesse gaz augmente (Lefebvre & McDonnell [51]). Guillard [31] mesure par sonde optique les cordes de gouttes sur l'axe de l'injecteur, et montre que la corde moyenne est proportionnelle à la vitesse liquide. Avec la même technique de mesure et pour un injecteur similaire, Delon [22] montre que la corde moyenne évolue en  $U_G^{-n}$  avec  $n=2$  selon la section de l'injecteur gaz  $H_G$ . En particulier, la corde moyenne diminue lorsque  $H_G$  augmente, jusqu'à une valeur asymptotique pour laquelle l'augmentation de la section gaz n'a plus d'influence sur  $C_{10}$ . Baillot *et al.* [5] obtiennent quant à eux une évolution du diamètre de Sauter moyen avec le Weber gaz  $D_{32} \propto We^{-1}$ , où  $We = (\rho_G U_G^2 H_L) / \sigma$ . L'injecteur utilisé présente un diamètre liquide  $H_L = 6 \text{ mm}$  et de section gaz  $H_G = 1 \text{ mm}$ . Le Reynolds liquide est fixé à 3540 et le nombre de Weber varié de 100 à 3300.

Hong [35] a réalisé en configuration coaxiale des mesures par sonde optique sur l'axe et à une distance radiale d'un rayon d'injecteur liquide, et à distance axiale proche de l'injecteur, au niveau de la longueur de dard (Figure I.10a). La présence de paquets liquides de tailles importantes a été mesurée sur l'axe ; ils résultent de l'atomisation du jet liquide mais n'ont pas encore subi de brisure secondaire (cf. Figure I.10b). Hong [35] compare le flux local  $j_L(d, x)$  par classes de tailles de gouttes, moyenné sur une section radiale du spray à deux distances axiales  $x/H_L=6$  et  $x/H_L=9$  ( $x$  est la distance axiale de mesure). Les différences de flux entre les deux distances axiales et pour chaque classe de taille révèlent la présence de brisures secondaires et de coalescences de gouttes. Mais ces phénomènes ne concernent que 10% du flux total.

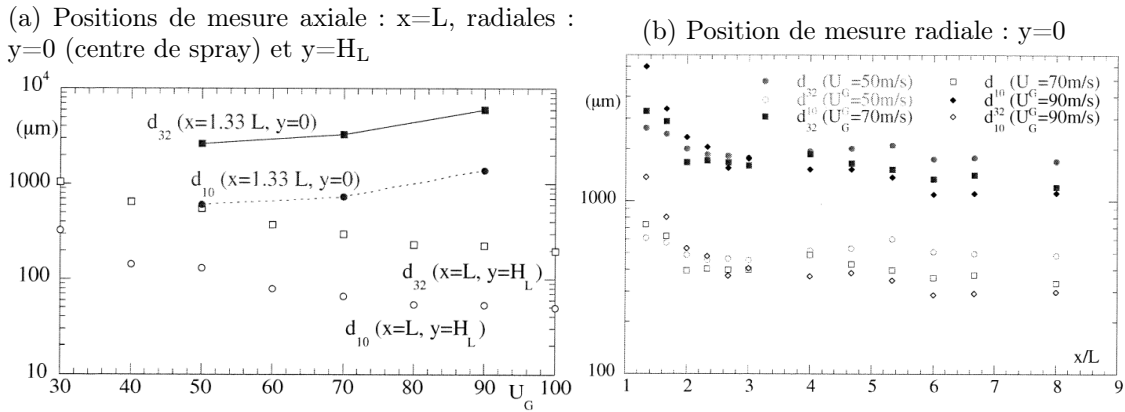


FIGURE I.10 – Mesures de gouttes réalisées par Hong [35] sur un injecteur co-axial : (a) sur l'axe et à distance radiale  $y=H_L$ , au niveau de la longueur de dard et fonction de la vitesse gaz. (b) En fonction de la distance axiale, sur l'axe de l'injecteur.  $M=16$ .

Pilch & Erdman [73] ont observé différents types de brisures secondaires selon le nombre de Weber de la goutte (Figure I.12), défini comme suit :

$$We = \rho V^2 d / \sigma \quad (\text{I.17})$$

$V$  et  $d$  sont respectivement la vitesse relative de la goutte par rapport à l'air et le diamètre de la goutte avant sa brisure.

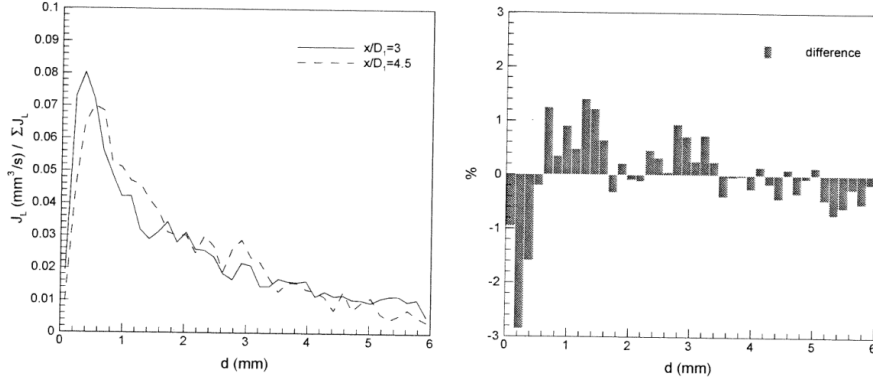


FIGURE I.11 – Mesures du flux de gouttes par classes de tailles, réalisées par Hong [35] sur un injecteur co-axial. Distributions du flux par classe pour les distances  $x/H_L=6$  et  $x/H_L=9$  (gauche). Histogramme de la différence relative entre les deux sections (droite).  $M=16$ ,  $U_G=70$  m/s.

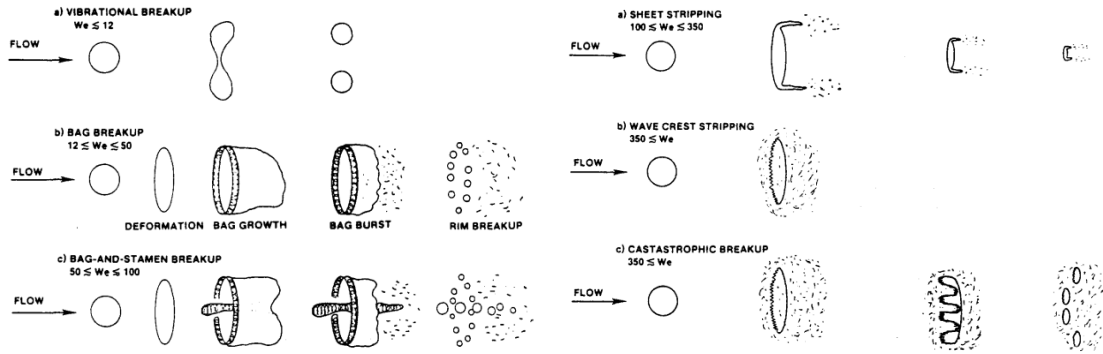


FIGURE I.12 – Classification des modes de brisure secondaire d'une goutte proposée par Pilch & Erdman [73], basée sur le nombre de Weber de la goutte.

La brisure secondaire peut être causée par deux mécanismes :

- due à la vitesse relative des gouttes, qui survient lorsque le nombre de Weber basé sur la vitesse relative de la goutte est supérieur à 12 :

$$We_r = \frac{\rho_G U_r^2 d}{\sigma} \quad (\text{I.18})$$

où  $U_r = |U - U_G|$  la vitesse relative de la goutte.

- due à la turbulence, dont le Weber critique est basé sur la fluctuation de vitesse turbulente :

$$We_t = \frac{\rho_G u'^2 d}{\sigma} \quad (\text{I.19})$$

La brisure par turbulence a lieu pour un Weber critique turbulent supérieur à 1 environ. Ce type de brisure a été largement étudié : la littérature sur ces sujets est conséquente. Nous ne ferons que mentionner Lasheras *et al.* [47], qui ont étudié l'effet de la turbulence sur la brisure secondaire des gouttes ainsi que leur coalescence, qui ne dépendent que du taux de dissipation de l'énergie cinétique turbulente induite par le jet gaz. La brisure secondaire par turbulence n'a plus lieu pour des tailles de gouttes inférieures à  $d_c = (12\sigma/\delta\rho)^{3/5}\epsilon^{-1/4}$ , et la coalescence pour des tailles supérieures à  $d_{\max} \approx \mu_G/\rho_L\epsilon^{-1/4}$ . Comme  $\epsilon$  diminue avec la distance axiale à l'injecteur, la brisure secondaire a lieu proche injecteur car  $\epsilon$  est grand et la coalescence n'est donc pas possible. L'inverse a lieu plus en aval au delà d'une distance critique  $x_c$ , car  $\epsilon$  devient faible. Après expression de  $\epsilon$  en fonction des paramètres de contrôle,

Lasheras *et al.* [47] obtiennent l'expression de cette distance critique :

$$x_c \propto U_G^{-4/5} \left[ \frac{1}{2H_G(1+m)} \right]^{-3/5} \left( \frac{\sigma}{\rho_G} \right)^{2/5} \quad (\text{I.20})$$

où  $m$  est le nombre de gouttes résultantes de la brisure secondaire d'une goutte mère [48]. Et le diamètre critique devient :

$$d_c \propto \left[ \frac{U_G^3}{(2H_G + H_L)(1+m)} \right]^{-2/5} \left( \frac{\sigma}{\rho_G} \right)^{3/5} \quad (\text{I.21})$$

Hsiang & Faeth [37] ont par la suite eux aussi proposé une cartographie de ces modes de brisure secondaire, à partir d'observations expérimentales utilisant des liquides de différentes viscosités et tensions de surfaces, en fonction des nombres de Weber et d'Ohnesorge (Figure I.13). Ce dernier est le rapport des contributions de la viscosité et de la tension de surface :

$$Oh = \frac{\mu_d}{(\rho_d d \sigma)^{0,5}} \quad (\text{I.22})$$

avec  $\mu_d$ ,  $\rho_d$  les viscosité et densité de la goutte. Lorsque les forces de tension de surface surpassent celles de viscosité ( $Oh \ll 1$ ), Hsiang & Faeth [37] montrent que la goutte est simplement déformée sans subir de brisure en dessous d'un Weber critique d'environ 10. Lorsque le nombre de Weber augmente, par exemple par augmentation de la vitesse d'entraînement gaz ou réduction de la tension de surface, la goutte subit une brisure secondaire membrane, multimode ou par cisaillement à plus fort Weber. L'effet cohésif de la viscosité est remarquable lorsque les forces de viscosités surpassent celles de tension de surface ( $Oh \gg 1$ ). Le Weber critique pour atteindre la brisure de la goutte devient très grand ( $We \approx 1000$ ). Les valeurs supérieures n'ont pas été testées.

### I.1.3 Conclusion sur l'atomisation assistée

Les différents régimes d'atomisation ainsi que les mécanismes qui y conduisent sont connus. Cependant, le rôle explicite des conditions d'injection sur l'atomisation assistée n'est pas encore toujours bien compris, notamment en ce qui concerne la taille des gouttes issues de la rupture du jet liquide. En particulier, l'effet de la tension de surface reste à éclaircir.

## I.2 Tensioactifs

Les tensioactifs sont des substances solubles dans l'eau qui permettent la réduction de la tension de surface d'une interface avec une autre substance peu soluble. Les molécules se positionnent à l'interface car elles y minimisent l'énergie libre. Une partie de la structure moléculaire (monomère) est localisée dans la phase gazeuse (queue hydrophobe), la seconde dans la phase liquide (tête hydrophile). Il existe des tensioactifs cationiques et anioniques, dont la tête est chargée négativement et positivement respectivement. Le SDS est un tensioactif anionique par exemple, la famille des  $C_n$ TAB est cationique. Il existe aussi les tensioactifs zwitterioniques dont la tête porte deux charges opposées, et enfin non-ioniques qui ne portent aucune charge. Au delà d'une certaine concentration et pour un système à l'équilibre, les monomères se regroupent en structures sphériques (micelles) dans la solution afin de minimiser l'énergie du système. On parle de Concentration Micellaire Critique (CMC). Lorsqu'une nouvelle interface air/eau est créée, il n'y a pas de molécule de tensioactif à la surface. En conséquence, la tension superficielle  $\sigma$  vaut celle de l'eau pure  $\sigma_0$ . Puis les molécules sont adsorbées à l'interface, et la tension de surface réduite. Pour un système à l'équilibre, la tension de surface lorsque l'interface est saturée en monomères est abaissée jusqu'à une valeur  $\sigma_\infty$ , propre à la molécule. Les mécanismes à l'oeuvre dans ce

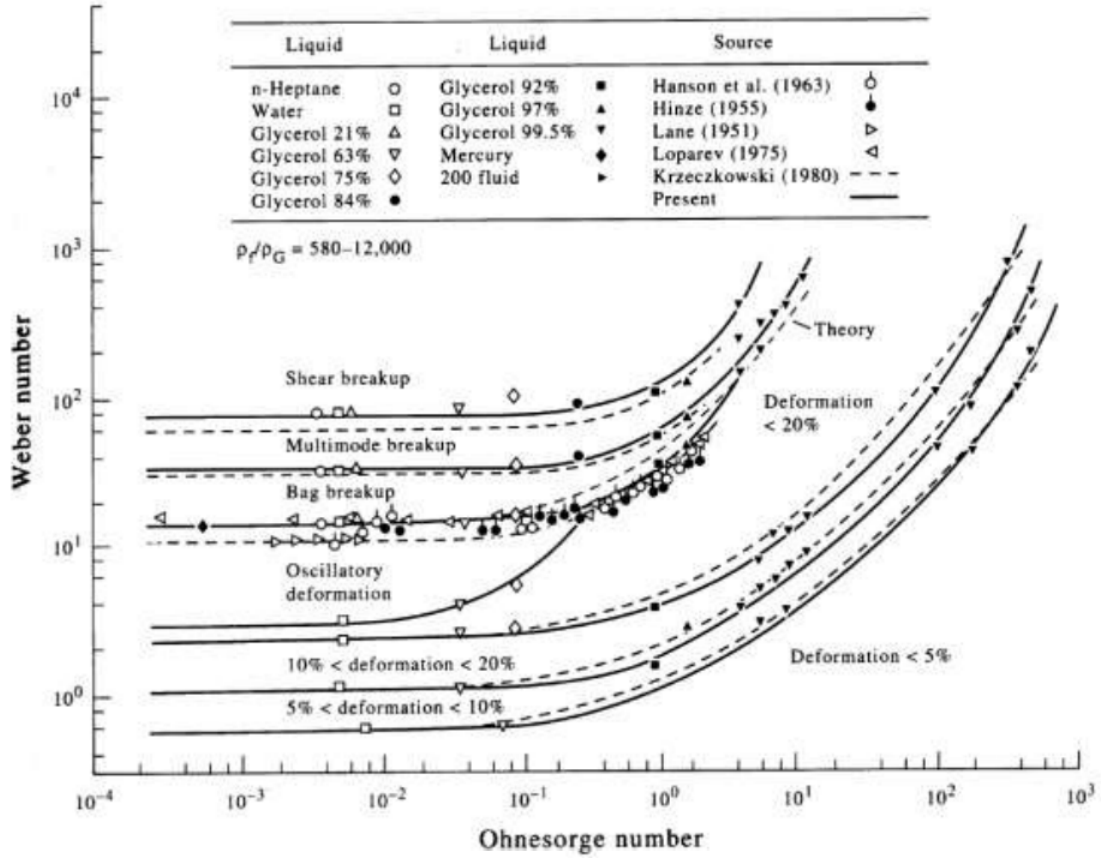


FIGURE I.13 – Cartographie des modes de brisure secondaire d'une goutte basée sur les nombres de Weber de la goutte et d'Ohnesorge, Hsiang & Faeth [37].

processus de transport du fluide vers l'interface sont détaillés dans la sous-section suivante (I.2.1). Une fois à l'interface, un transport le long de celle-ci peut également donner lieu à des gradients de concentration, induisant des effets visco-élastiques (I.2.2). Ainsi, un tensioactif peut non seulement abaisser la tension de surface d'une interface, mais également modifier ses propriétés rhéologiques.

## I.2.1 Mécanismes de transport vers une interface eau-air

Différents mécanismes de transport sont à l'oeuvre lors de l'adsorption d'un tensioactif vers l'interface, et sont illustrées sur la Figure I.14. Les molécules de tensioactif (monomères) se déplacent dans un premier temps par diffusion et/ou advection dans le fluide ("bulk" sur la Figure I.14) vers une sous couche proche de l'interface, appelée la sous-couche d'adsorption. Afin d'être adsorbées de la sous-couche d'adsorption vers l'interface, les molécules doivent dépasser une barrière d'énergie. Une fois à l'interface, les molécules peuvent également retourner à la sous-couche par désorption. De plus, seules les monomères sont adsorbés à l'interface. Les monomères peuvent donc se former en micelles mais ces dernières peuvent se dissocier de nouveau en monomères avant d'être adsorbés.

### I.2.1.1 Équations de transport

Les équations de transport correspondant à ces différents mécanismes sont maintenant explicitées. L'équation de diffusion des monomères et micelles dans le fluide est donnée par :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla C = D_c \nabla^2 C - J_{bs} - n J_{bm} \quad (\text{I.23})$$

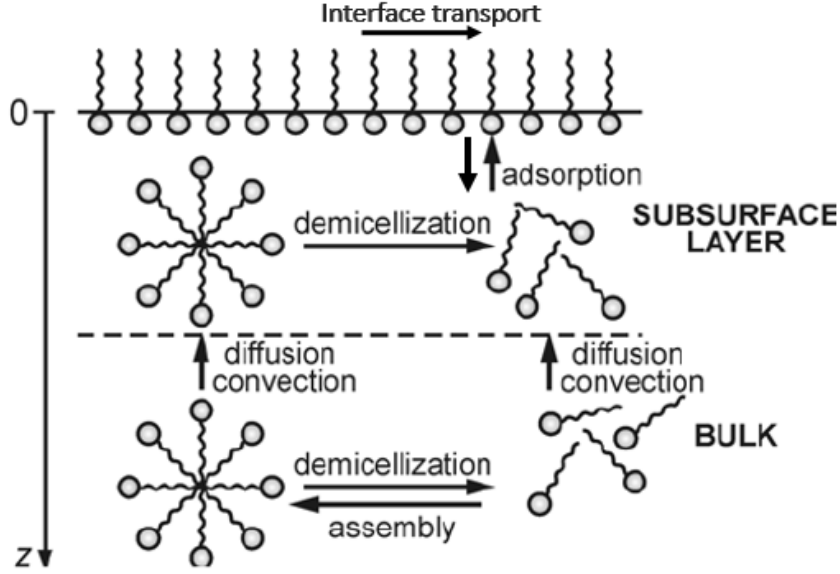


FIGURE I.14 – Illustration des mécanismes de transport d’un tensioactif, du fluide vers l’interface [20].

$$\frac{\partial M}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla M = D_m \nabla^2 M + J_{bm} \quad (\text{I.24})$$

où  $C$ ,  $M$  sont respectivement la concentration des monomères et celle des micelles.  $D_c$ ,  $D_m$  désignent les coefficients de diffusion du monomère et du micelle dans le liquide. En solution diluée,  $D_c$  dépend de la taille des molécules. Le temps de diffusion varie donc avec la longueur de la chaîne carbonée du tensioactif.  $J_{bs}$  et  $J_{bm}$  correspondent respectivement au flux d’échange entre le fluide ( $b$ ) et la surface ( $s$ ), et celui échangé entre la phase monomère ( $c$ ) et la phase micellaire ( $m$ ).

Puisque les agrégats micellaires ne peuvent pas être adsorbés directement à l’interface, ces agrégats doivent d’abord se dissocier en monomères. En supposant que chaque micelle est composée de  $n$  monomères :  $nC \rightleftharpoons M$ . Le transfert de la phase monomère à la phase micellaire est donc déterminé par la cinétique chimique :

$$J_{bm} = k_b C^n - k_m M \quad (\text{I.25})$$

Le processus d’adsorption-desorption des monomères depuis la sous-couche d’adsorption vers l’interface est ensuite décrit par l’équation de Langmuir [1] :

$$J_{bs} = \frac{d\Gamma}{dt} = k_a C_s \left(1 - \frac{\Gamma}{\Gamma_\infty}\right) - k_d \frac{\Gamma}{\Gamma_\infty} \quad (\text{I.26})$$

où  $\Gamma(z, t)$  est la concentration surfacique des monomères,  $C_s$  est la concentration volumique dans la sous-couche d’adsorption-desorption et  $\Gamma_\infty$  est la concentration à saturation.  $k_a$  et  $k_d$  sont les constantes d’adsorption et de desorption respectivement, propres à la nature et concentration du tensioactif (et parfois nommées  $k_1$  et  $k_2$  respectivement).

Enfin, l’équation de transport des molécules de tensioactif à l’interface est communément donnée sous la forme différentielle par Aris [4] et Stone [82] :

$$\frac{d\Gamma}{dt} + \nabla_S \cdot (\Gamma \mathbf{u}_S) + \Gamma (\nabla_S \cdot \mathbf{n}) (\mathbf{u} \cdot \mathbf{n}) = D_S \nabla^2 \Gamma + J_{bs} \quad (\text{I.27})$$

$$\frac{d\Gamma}{dt} + \text{Advection} + \text{Dilatation-Compression} = \text{Diffusion} + \text{Adsorption-Desorption} \quad (\text{I.28})$$

où  $\nabla_s = (\mathbf{I} - \mathbf{nn}) \cdot \nabla$  est le gradient de surface,  $\mathbf{u}_s = (\mathbf{I} - \mathbf{nn}) \cdot \mathbf{u}$  est le vecteur vitesse le long de la surface et  $\mathbf{n}$  est le vecteur normal unitaire à l'interface.  $D_s$  est le coefficient de diffusion du tensioactif à l'interface, souvent négligeable.

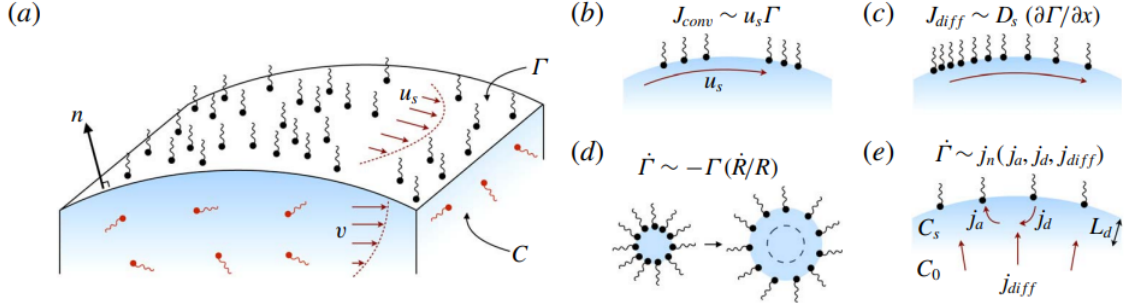


FIGURE I.15 – Illustration des mécanismes de transport influant la concentration à l'interface d'un tensioactif, d'après Manikantan & Squires [59]. (a) Géométrie d'une interface peuplée par un tensioactif.  $v$  est la vitesse convective dans le fluide,  $u_s$  à l'interface. (b-e) Flux correspondant aux différentes contributions de l'équation I.27. Les variations de concentration interfaciale sont induites par : (b) convection causée par la vitesse interfaciale (c) diffusion due à un gradient de concentration à l'interface (d) variations d'aire (e) adsorption-désorption depuis ou vers la sous-couche.

### I.2.1.2 Transfert limité par diffusion et par cinétique d'adsorption

Afin d'estimer les temps d'adsorption d'un tensioactif ( $\tau_s$ ), l'approche consiste généralement à considérer que le transfert du tensioactif du liquide vers l'interface est limité soit par la diffusion soit par le passage de la barrière d'énergie. Deux modèles théoriques ont été développés pour chaque situation. Les deux hypothèses sont illustrées en Figure I.16. Dans le cas limité par diffusion, le passage de la sous-couche à l'interface est idéalement considéré instantané ( $\tau_d > \tau_k$ ). L'adsorption dépend de la vitesse de diffusion sur une épaisseur  $L_d$ . Dans le cas limité par cinétique/barrière, la concentration dans le fluide est considérée égale à celle de la sous-couche ( $C_0 = C_s$ ) et le temps d'adsorption dépend donc du temps de transfert de la sous-couche vers l'interface.

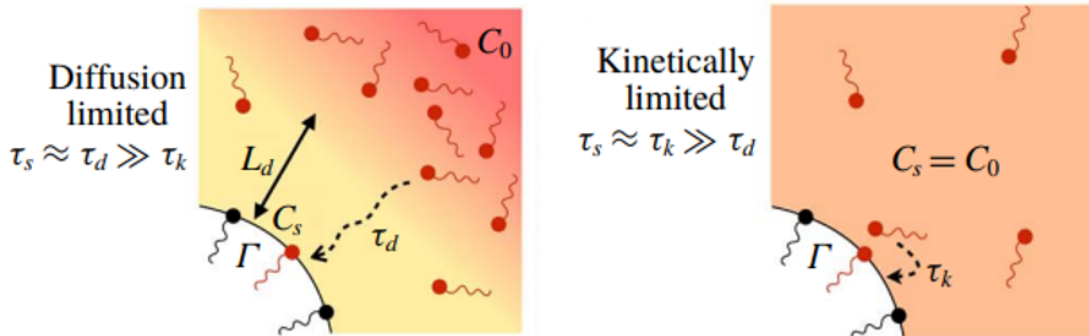


FIGURE I.16 – Illustration d'un transport limité par diffusion (gauche), par cinétique d'adsorption (droite) [59].

Dans le cas d'un transfert limité par diffusion et d'une interface nouvellement créée (donc n'étant pas encore peuplée), Ward & Tordai [92] ont relié la concentration surfacique  $\Gamma$ , les concentrations dans le volume fluide  $C$  et dans la sous-couche d'adsorption  $C_s$  en fonction du temps par la relation :

$$\Gamma = 2C\sqrt{\frac{Dt}{\pi}} - 2\sqrt{\frac{D}{\pi}} \int_0^{\sqrt{t}} C_s(t-\tau)d\sqrt{\tau} \quad (\text{I.29})$$



où  $D$  est le coefficient de diffusion. Cependant, cette équation présente deux inconnues :  $\Gamma$  et  $C_S$ . L'équation de Langmuir (équation I.26) qui décrit le transfert depuis la sous-couche vers l'interface permet de relier ces deux variables. Aux temps courts, le second terme de l'équation de Ward & Tordai [92] (équation I.29) peut être négligé et  $\Gamma$  évolue en  $\sqrt{t}$  :

$$\Gamma \approx 2C\sqrt{\frac{Dt}{\pi}} \quad (\text{I.30})$$

Puis l'isotherme de Gibbs relie la concentration de surface  $\Gamma$  et la concentration volumique  $C$  à la tension de surface  $\sigma$  :

$$\Gamma = -\frac{1}{k_B T} \frac{d\sigma}{d \ln C} \quad (\text{I.31})$$

avec  $k_B$  la constante de Boltzmann et  $T$  la température. En injectant l'équation I.30 dans I.31, une prédiction de la tension de surface en fonction du temps est obtenue pour un transfert limité par diffusion :

$$\sigma = \sigma_0 - 2k_B T C \sqrt{\frac{Dt}{\pi}} \quad (\text{I.32})$$

Par ailleurs, le temps de diffusion s'exprime à partir de l'équation de Ward & Tordai [92] comme :

$$\tau_d = \frac{1}{D} \left( \frac{d\Gamma}{dC} \right)^2 = \frac{1}{D} h_\Gamma^2 \quad (\text{I.33})$$

où  $h_\Gamma$  est la longueur de réservoir, qui correspond à la profondeur dans le volume fluide nécessaire pour peupler une interface et ne dépend que du tensioactif et de sa concentration.  $h_\Gamma$  est généralement compris entre 1 et 10  $\mu\text{m}$ . Si l'épaisseur de la phase fluide dans laquelle se diffuse le tensioactif est grande devant la longueur de réservoir, la sous-couche d'adsorption est considérée alimentée par un réservoir infini de tensioactifs. Dans l'hypothèse où le transfert est limité par diffusion, et que la cinétique d'adsorption est très rapide, l'équilibre local entre  $C_S$  et  $\Gamma$  est instantané. En injectant l'équation de Langmuir dans I.33 avec  $C_S=C$ , l'on obtient :

$$\tau_d = \left( \frac{\Gamma_\infty}{a} \right)^2 \frac{1}{D(1+C/a)^4} \quad (\text{I.34})$$

où  $a=k_2/k_1$  est la constante de Langmuir von Szyszkowski.

Et l'on retrouve à partir de I.33 et I.34 l'équation proposée par Bussonnière & Cantat [9] pour la longueur de réservoir (pour des concentrations inférieures à la CMC) :

$$h_\Gamma = \Gamma_\infty \frac{a}{(a+C)^2} \quad (\text{I.35})$$

Nous avons donc introduit la théorie menant à l'estimation du temps caractéristique de diffusion. Le cas d'un transfert limité par cinétique est maintenant explicité.

Dans le cas où la diffusion est rapide devant l'adsorption, la concentration volumique est égale à la concentration dans la sous-couche ( $C=C_S$ ). L'équation de Langmuir (I.26) s'écrit alors :

$$\frac{d\Gamma}{dt} = k(\Gamma_e - \Gamma) \quad (\text{I.36})$$

avec

$$k = (k_a C_0 + k_d) / \Gamma_\infty \quad (\text{I.37})$$

Après intégration, l'équation I.36 devient :

$$\Gamma = \Gamma_e + (\Gamma_0 - \Gamma_e) e^{-kt} \quad (\text{I.38})$$

Le temps caractéristique d'un transfert contrôlé par cinétique est évalué comme l'inverse du coefficient de transfert :

$$\tau_k = k^{-1} = \frac{\Gamma_\infty}{k_a C_0 + k_d} \quad (\text{I.39})$$

Ces temps caractéristiques sont très courts, généralement de l'ordre de 10 *ms*. C'est pourquoi la technique du jet oscillant est couramment utilisée pour déterminer ce temps. Elle permet de mesurer les variations de tension de surface dans cette fenêtre de temps. Il est ensuite possible de relier la tension de surface et coefficients d'adsorption à partir de l'équation de von Szyskowski [53] :

$$\pi = RT\Gamma_\infty \ln(1 + C/a) \quad (\text{I.40})$$

où  $\pi = \sigma_0 - \sigma$ . Ce qui avec l'équation I.37 donne :

$$k = \frac{k_d}{\Gamma_\infty} \exp\left(\frac{\pi}{RT\Gamma_\infty}\right) \quad (\text{I.41})$$

Pour des tensioactifs ioniques, Lucassen-Tempel [57] couplent la variation de tension de surface et concentration surfacique par l'équation :

$$\pi = -RT\Gamma_\infty \left[ \ln\left(1 - \frac{\Gamma}{\Gamma_\infty}\right) + h\left(\frac{\Gamma}{\Gamma_\infty}\right)^2 \right] \quad (\text{I.42})$$

avec  $h$  le paramètre d'interaction spécifique à chaque système. Par exemple,  $h=1,14$  pour le SDS, 0 pour les  $C_n$ TAB [53].

Pour un tensioactif ionique à fort coefficient d'activité, la forme diffère et est celle de Lucassen-Reynders [56] :

$$\pi = -2RT\Gamma_\infty \ln\left(1 - \frac{\Gamma}{\Gamma_\infty}\right) \quad (\text{I.43})$$

Pour le tensioactif anionique SDS, Li *et al.* [53] utilisent l'équation I.42 modifiée comme suit :

$$\pi = -2RT\Gamma_\infty \left[ \ln\left(1 - \frac{\Gamma}{\Gamma_\infty}\right) + h\left(\frac{\Gamma}{\Gamma_\infty}\right)^2 \right] \quad (\text{I.44})$$

Pour la famille des  $C_n$ TAB cationiques à forte activité de surface, la forme I.43 est privilégiée à partir de l'équation I.36 :

$$\pi = -2RT\Gamma_\infty \ln\left[1 - \frac{\Gamma_e}{\Gamma_\infty}(1 - e^{-kt})\right] \quad (\text{I.45})$$

### I.2.1.3 Caractérisation de la dynamique d'un tensioactif par mesure de la tension de surface dynamique

Nous avons vu que la tension superficielle d'une interface nouvellement formée  $\sigma$  est proche de celle du solvant  $\sigma_0$  à l'instant  $t_0$ . Cette valeur ne diminue jusqu'à la valeur d'équilibre  $\sigma_\infty$  qu'après un certain temps, qui peut varier de quelques millisecondes à quelques jours en fonction du type de tensioactif et de sa concentration. La tension de surface dynamique  $\sigma(t)$  (aussi notée  $\sigma_{dyn}$ ) est liée à la cinétique d'adsorption du tensioactif à l'interface, qui est elle-même un phénomène dynamique (équations I.23-I.26). La caractérisation de la cinétique d'adsorption des tensioactifs joue un rôle important lorsque ces solutions sont utilisées dans des phénomènes rapides, telle que l'atomisation assistée dans notre cas d'étude.

La DST (Tension Superficielle Dynamique) peut être mesurée par diverses techniques de mesures : tensiomètre à bulle de pression maximale, volume de goutte, jet oscillant, technique de la goutte pendante, plateau incliné, etc [26]. Chaque technique possède une fenêtre temporelle de mesure différente. La Figure I.17 les classe pour chaque type d'instrument de mesure de la DST [27]. L'on peut constater que la technique du jet oscillant

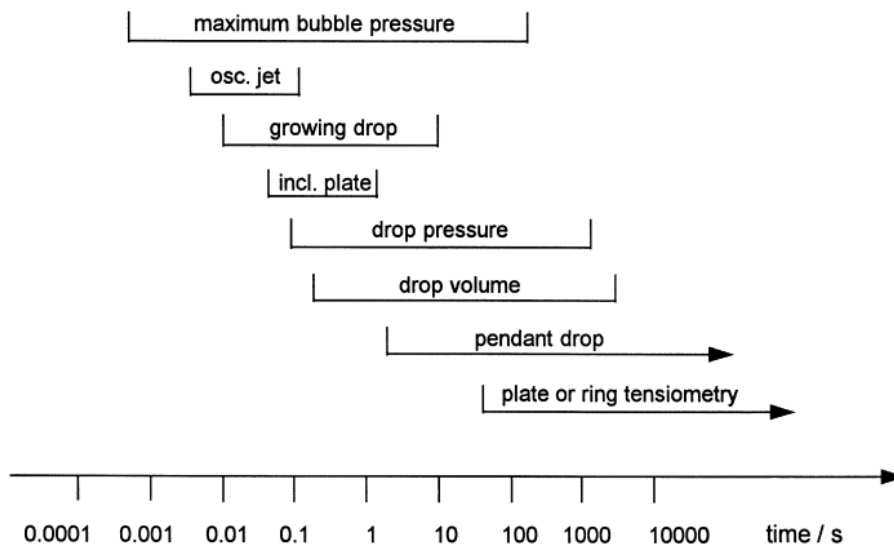


FIGURE I.17 – Fenêtres de temps sur la mesure de DST pour différents instruments, d’après Eastoe & Dalton [27].

permet des mesures aux temps les plus courts. Le choix de la technique dépend donc de la dynamique d’adsorption de la molécule étudiée.

En traçant l’évolution de la tension de surface dynamique en fonction du temps, son évolution temporelle peut être ajustée par l’équation de Hua & Rosen [38] :

$$\sigma(t) = \sigma_{\infty} + \frac{\sigma_0 - \sigma_{\infty}}{1 + (t/\tau)^n} \quad (\text{I.46})$$

où  $\sigma_{\infty}$  et  $\sigma_0$  correspondent respectivement à la tension de surface d’équilibre et de l’eau pure,  $\tau$  est le paramètre d’ajustement qui correspond à un temps typique d’adsorption, et  $n$  est pris égal à 1 pour les tensioactifs. Un tensioactif rapide aura un temps caractéristique faible ( $\tau \sim 1 \text{ ms}$ ), un tensioactif lent aura un temps caractéristique long ( $\tau \sim 100 \text{ ms}$ ).

Des mesures de la DST ont également permis de mettre en évidence l’existence de barrières d’adsorption cinétiques. En effet, la confrontation des mesures de DST avec les modèles d’adsorption limitée par diffusion donne un écart systématique avec les mesures expérimentales, ce qui montre que l’adsorption n’est pas seulement contrôlée par diffusion. La nature des barrières d’adsorption et de désorption est encore mal comprise, mais certaines de type électrostatique ont été mises en évidence pour les tensioactifs ioniques, notamment par Ritacco *et al.* [77]. La comparaison de la prédiction de  $\sigma(t)$  avec les mesures expérimentales (obtenues par tensiomètre à pression de bulle, pour une solution aqueuse de 10,8 mM de DTAB) montre un écart important avec le modèle d’adsorption limitée par diffusion aux temps longs (Figure I.18, gauche). Puis lorsque du sel est ajouté à la solution - ce qui a pour effet de supprimer les effets électrostatiques -, l’on observe cette fois un bon accord avec le modèle de transport par diffusion (Figure I.18, droite). Ces barrières électrostatiques n’ont en revanche été observées qu’aux concentrations inférieures à la CMC. Par ailleurs, He *et al.* [33] ont montré que les barrières énergétiques peuvent être diminuées ou supprimées en présence de convection, la raison étant que l’énergie hydrodynamique tend à dépasser l’énergie d’adsorption. C’est le cas pour le tensioactif ionique SDS entre autres, pour lequel il a été montré qu’en présence de convection suffisamment importante, le processus de désorption est uniquement contrôlé par diffusion. Pour les tensioactifs cationiques de la famille des  $C_n\text{TAB}$  en revanche, les barrières électrostatiques subsistent même en présence de convection.

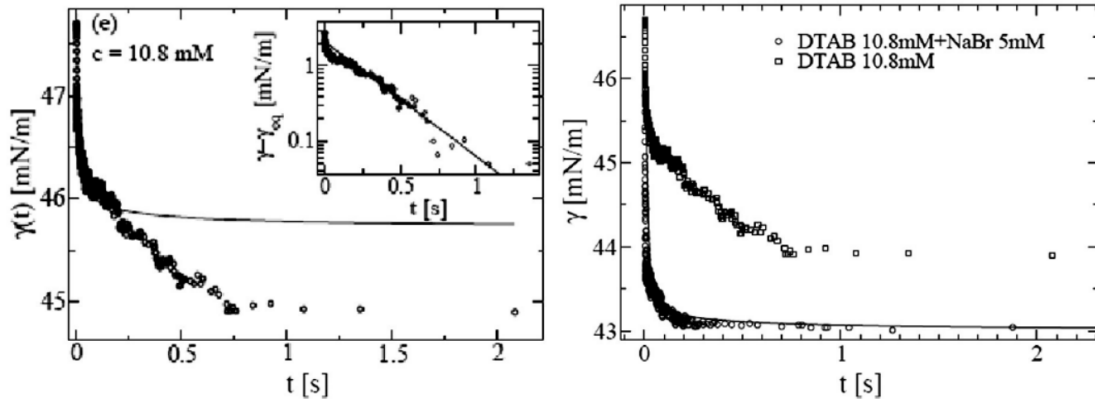


FIGURE I.18 – Mesures de la DST pour des solutions de 10,8 mM de DTAB (ou  $C_{12}TAB$ ). La courbe pleine est la prédiction par le modèle d’adsorption limitée par diffusion (gauche). Mesure reproduite à concentration identique mais avec ajout de sel (droite). Ritacco *et al.* [77].

### I.2.2 Phénomènes induits et induisants dus à des gradients de tension interfaciale

La déformation d’une interface induit la modification de la distribution en tensioactif à l’interface. Cela génère un gradient de tension interfaciale (cf. équation I.27) dû à un gradient d’adsorption dans la zone soumise à la contrainte. Le système cherche alors à rétablir la distribution uniforme du tensioactif en générant un flux de tensioactifs des zones fortement peuplées vers celles peu peuplées (Figure I.19). C’est ce qu’on appelle l’effet Marangoni, et c’est notamment ce phénomène qui confère aux surfaces chargées en tensioactif une plus grande résistance à la déformation (cas des bulles de savon par exemple).

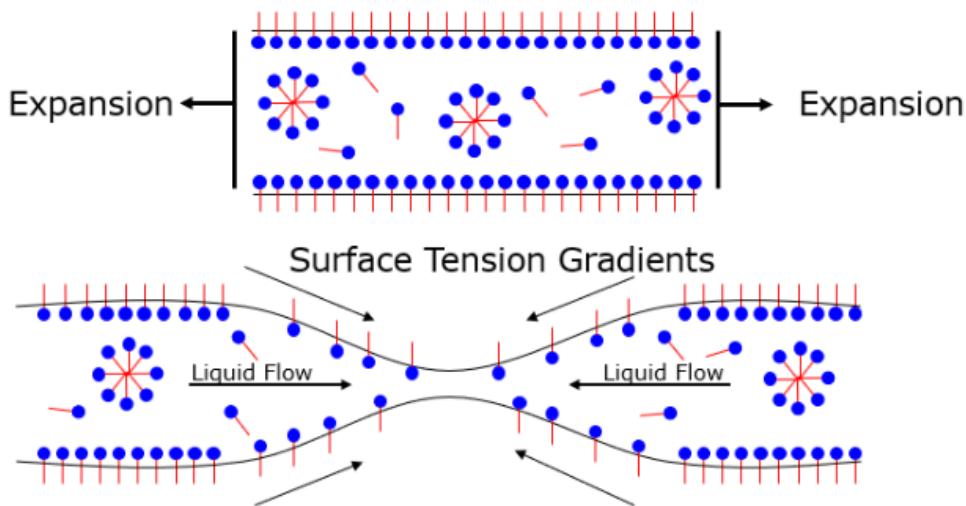


FIGURE I.19 – Gradient de tension de surface induit par une extension d’une interface peuplée, d’après Hutin [39]

Soit  $u_s$  la vitesse de l’interface qui est aussi la vitesse du gaz et du liquide à l’interface. La contrainte dans le gaz est négligeable devant la contrainte dans le liquide si la viscosité du gaz est négligeable devant la viscosité du liquide, ce qui est généralement le cas. On obtient donc  $\tau_L = \nabla_S \sigma$ . L’existence d’une telle contrainte ne peut être due qu’à un gradient de vitesse proche de l’interface dans la phase liquide. Le gradient de tension interfaciale

est donc compensé par la contrainte de cisaillement due à la viscosité du liquide tel que :

$$\frac{d\sigma}{dt} = -\eta \frac{du_t}{dn} \quad (\text{I.47})$$

Avec  $(\mathbf{n}, \mathbf{t})$  les composantes normales et tangentielles d'un point à l'interface, et  $\eta$  la viscosité dynamique du fluide. Le gradient de tension superficielle génère un cisaillement dans la phase liquide, et par continuité des vitesses tangentielles à l'interface, le gaz y est entraîné à la même vitesse que le liquide.

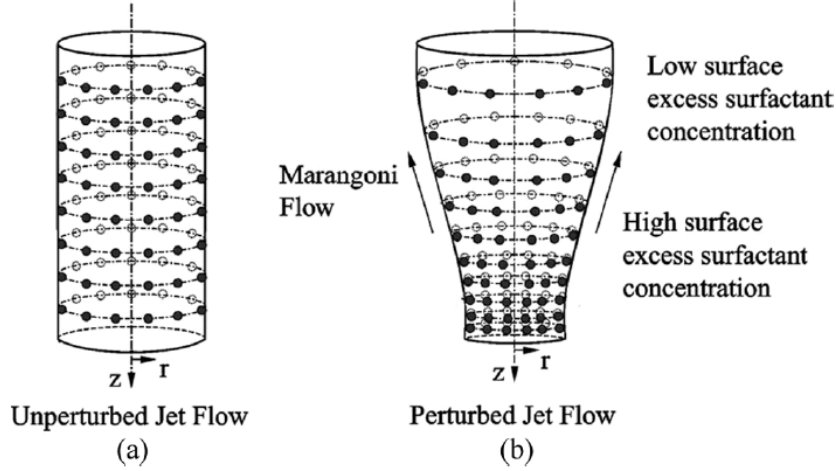


FIGURE I.20 – Illustration de la répartition spatiale de molécules de tensioactifs à la surface d'un jet liquide. (a) Distribution uniforme à la surface d'un jet non perturbé. (b) Effet Marangoni : vitesse superficielle induite par un gradient de tension de surface entre les régions du jet pincées et dilatées [2].

Une illustration de l'effet Marangoni dans le cas d'un jet dont la surface est perturbée a été proposée par Al-Sabagh *et al.* [2] (Figure I.20) : pour un écoulement axisymétrique idéalement non perturbé (a), l'interface est peuplée uniformément et il n'y a pas de gradient spatial de tension de surface. Lorsque l'écoulement est perturbé et présente des contractions et dilatations de l'interface (b), les creux et crêtes de vagues correspondent respectivement à la contraction et à l'étirement de la surface initiale. Ce qui conduit à une augmentation ou une diminution de la concentration interfaciale en monomères, et à la génération d'un effet Marangoni : proche de l'interface, les deux phases se dirigent dans la direction où la tension superficielle est la plus grande. La vitesse à l'interface est ainsi ralentie.

### I.2.3 Rhéologie d'une interface peuplée

Les tensioactifs modifient également la rhéologie de l'interface. Dans les phases bi-dimensionnelles comme les monocouches de tensioactifs, ou de polymères, deux types de déformations peuvent être distingués : le cisaillement et la dilatation/compression. Lorsqu'une compression/expansion locale apparaît dans la monocouche, il y a alors comme nous venons de le voir un gradient de tension de surface au sein de la monocouche. Afin de compenser ce gradient, les molécules de tensioactif ont tendance à migrer vers les régions de  $\sigma$  plus élevé. Il y a donc une force de rappel qui s'oppose à la déformation : c'est l'origine de l'élasticité interfaciale  $E$ . Elle représente l'énergie récupérée stockée dans l'interface, et est définie par l'équation de Gibbs - pour une interface purement élastique - comme l'augmentation de la tension de surface en fonction d'une déformation  $\Delta A/A$  :

$$E = \frac{d\sigma}{dA/A} = \frac{d\sigma}{d(\ln A)} \quad (\text{I.48})$$

Pour une interface purement visqueuse, la variation de tension de surface s'exprime :

$$\Delta\sigma = \eta_d \frac{d \ln A}{dt} \quad (\text{I.49})$$

$\eta_d$  est la viscosité de surface d'une interface purement visqueuse. La contrainte de surface d'une interface est la contribution des cas purement élastique et purement visqueux.

Les mesures de visco-élasticité sont généralement effectuées par oscillation de l'aire d'une bulle au cours du temps. Une interface subissant des variations d'aire a une réponse dépendante de sa tension de surface, elle même soumise à la dynamique d'adsorption. Si l'interface subit une déformation sinusoïdale au cours du temps de fréquence  $\omega$  et d'amplitude  $\delta A$ , un déphase  $\Phi$  apparaît entre les courbes de variation d'aire et de variation de tension de surface. Le module visco-élastique peut alors s'écrire sous forme complexe :

$$E = |E| \cos(\Phi) + i |E| \sin(\Phi) \quad (\text{I.50})$$

où  $|E| \cos(\Phi) = E'$  correspond au module élastique ou de stockage, et  $|E| \sin(\Phi) = E''$  au module visqueux ou de perte.

La Figure I.21 illustre les significations des modules élastique (surface purement élastique) et visqueux (surface purement visqueuse). Le module élastique peut être vu comme la réponse en concentration surfacique du tensioactif à une variation d'aire, tandis que le module visqueux représente la rapidité à laquelle les molécules vont repeupler l'interface depuis le volume fluide. A basse fréquence d'oscillation, l'adsorption est plus rapide que la déformation et donc  $E' \rightarrow 0$ ,  $E = E''$ . A haute fréquence, l'interface est purement élastique ( $E = E'$  et  $E'' = 0$ ).

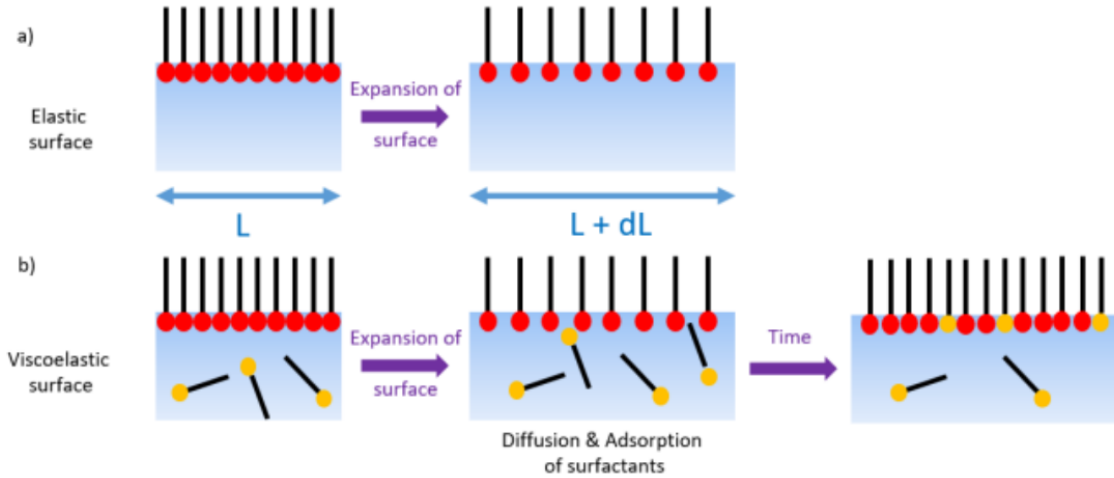


FIGURE I.21 – Illustrations des différences entre comportements élastique et viscoélastique, Hutin [39].

Des modèles de prédiction de ces modules en fonction de la fréquence d'excitation ont été proposés : le premier par Lucassen & Van Den Tempel [55] dans l'hypothèse d'une adsorption limitée par diffusion, le second suppose une adsorption limitée par cinétique/barrière d'énergie [59].

Une bulle de rayon  $R_0$  est plongée dans mélange de tensioactifs de concentration  $C_0$ . L'interface est peuplée à une concentration  $\Gamma_0$ . Si l'interface est excitée radialement à une fréquence  $\omega$ , l'équation générale de conservation de la concentration surfacique I.27 devient [59] :

$$\frac{\partial \Gamma}{\partial t} + \frac{2u_r \Gamma}{R} = j_n \quad (\text{I.51})$$

où  $u_r = dR/dt$  est la vitesse radiale de l'interface,  $j_n$  le flux d'adsorption-desorption. Pour des petites perturbations, les concentrations surfacique  $\Gamma$  et volumique  $C$ , ainsi que

le rayon de la bulle  $R$  peuvent s'écrire sous la forme  $\zeta(t) = \zeta_0 + \delta\zeta e^{i\omega t}$ . En développant l'équation I.51 afin de l'exprimer en fonction de  $\Gamma$  uniquement et des paramètres de contrôle, Manikantan & Squires [59] arrivent à la relation suivante :

$$\frac{\partial\Gamma}{\partial\Gamma_{\text{insoluble}}} = \left[ 1 - iSt \left( \frac{1 + \sqrt{iWo}}{1 + \sqrt{iWo} + Da} \right) \right]^{-1} \quad (\text{I.52})$$

où  $\partial\Gamma_{\text{insoluble}}$  est la variation de concentration de surface pour un tensioactif insoluble. Dans ce cas, aucun échange de masse ne se produit entre la monocouche et la phase liquide adjacente, le produit  $\Gamma \times A$  est constant. Diminuer l'aire revient à augmenter  $\Gamma$ . L'élasticité  $E$  atteint une valeur limite, appelée parfois l'élasticité de Gibbs :

$$E_0 = \frac{\partial\sigma}{\partial\ln\Gamma} \frac{\partial\ln\Gamma}{\partial\sigma} = -\Gamma \frac{\partial\sigma}{\partial\Gamma} \quad (\text{I.53})$$

Les nombres de Womersley, Damköhler et Stanton sont définis comme les rapports des temps suivant :

$$Wo = \frac{\text{temps de diffusion}}{\text{période d'oscillation}} = \frac{\omega R_0^2}{D} \quad (\text{I.54a})$$

$$Da = \frac{\text{temps de diffusion}}{\text{temps d'adsorption}} = \frac{k_C R_0}{D} \quad (\text{I.54b})$$

$$St = \frac{\text{période d'oscillation}}{\text{temps de désorption}} = \frac{k_\Gamma}{\omega} \quad (\text{I.54c})$$

où  $k_C$  et  $k_\Gamma$  sont les constantes définissant le flux d'adsorption par cinétique  $j_{\text{kin}}$  tels que :

$$k_C(C_0, \Gamma_0) = \left. \frac{\partial j_a}{\partial C} \right|_{C_0, \Gamma_0} - \left. \frac{\partial j_d}{\partial C} \right|_{C_0, \Gamma_0} \quad (\text{I.55a})$$

$$k_\Gamma(C_0, \Gamma_0) = \left. \frac{\partial j_a}{\partial \Gamma} \right|_{C_0, \Gamma_0} - \left. \frac{\partial j_d}{\partial \Gamma} \right|_{C_0, \Gamma_0} \quad (\text{I.55b})$$

avec  $j_a, j_d$  les flux d'adsorption et desorption.

Et la relation entre le module élastique complexe  $E$  et la concentration surfacique  $\Gamma$  est donnée par :

$$\frac{E}{E_0} = -\frac{d\ln\Gamma}{d\ln A} = -\frac{R_0}{2\Gamma_0} \frac{\partial\Gamma}{\partial R} = \frac{\partial\Gamma}{\partial\Gamma_{\text{insoluble}}} \quad (\text{I.56})$$

Dans le cas d'une adsorption limitée par cinétique, le nombre de Damköhler tend vers zéro ( $Da \ll 1$ ), et l'équation I.52 devient :

$$\frac{E_{\text{kin}}}{E_0} = \frac{1}{1 + St^2} + i \frac{St}{1 + St^2} = \frac{1}{1 - \frac{i}{\tau_k \omega}} \quad (\text{I.57})$$

Les modules de charge et de perte sont donc dans ce cas :

$$E'_{\text{kin}} = \frac{1}{1 + St^2} \quad (\text{I.58a})$$

$$E''_{\text{kin}} = \frac{St}{1 + St^2} \quad (\text{I.58b})$$

Lorsque l'adsorption est limitée par diffusion,  $Da \gg 1$  et l'équation I.52 devient :

$$\frac{E_{\text{diff}}}{E_0} = \frac{\Lambda Wo}{\Lambda Wo - i - i\sqrt{iWo}} \quad (\text{I.59})$$

où  $\Lambda = (\frac{\partial \Gamma}{\partial C_s})/R_0 = h_\Gamma/R_0$  est la longueur de réservoir normalisée par le rayon de la bulle en l'absence de perturbation. Or, la longueur de réservoir est de l'ordre de  $10^{-7}$ - $10^{-6}$  m (cf. Table III.1) contre  $10^{-3}$ - $10^{-2}$  m pour la dimension de la bulle générée par le tensiomètre, ainsi  $\Lambda \ll 1$ . Après ré-organisation des parties réelles et imaginaires, l'on retrouve la formule de Lucassen & Van Den Tempel [55] :

$$\frac{E_{\text{diff}}}{E_0} = \frac{1 + \xi + i\xi}{1 + 2\xi + 2\xi^2} \quad (\text{I.60})$$

avec  $\xi = \sqrt{\omega_0/\omega}$  où  $\omega_0 = \frac{D}{2} \left(\frac{\partial C}{\partial \Gamma}\right)^2$  est la fréquence caractéristique de diffusion. D'où :

$$\xi = \frac{dC}{d\Gamma} \sqrt{\frac{D}{2\omega}} = \sqrt{\frac{D}{2h_\Gamma^2\omega}} = \sqrt{\frac{1}{2\omega\tau_d}} \quad (\text{I.61})$$

Et l'équation I.60 peut être décomposée selon les modules de charge et de perte :

$$E'_{\text{diff}} = E_0 \frac{1 + \xi}{1 + 2\xi + 2\xi^2} \quad (\text{I.62a})$$

$$E''_{\text{diff}} = E_0 \frac{\xi}{1 + 2\xi + 2\xi^2} \quad (\text{I.62b})$$

Le nombre adimensionnel de Marangoni est le rapport de l'élasticité et de la tension de surface d'équilibre. Il caractérise la capacité d'un tensioactif à modifier l'élasticité d'une interface :

$$Ma = \frac{E_0}{\sigma_\infty} \quad (\text{I.63})$$

Monroy *et al.* [68] déterminent les coefficients de dilatation visco-élastique de monocouches de tensioactifs ( $C_{12}\text{TAB}$ ,  $C_{14}\text{TAB}$  et  $C_{16}\text{TAB}$ ) par excitation de vagues capillaires à la surface air-eau (cf. Figure I.22). Les auteurs montrent que ceux-ci dépendent de la longueur de la chaîne carbonée de la molécule, de sa concentration et de la fréquence d'excitation. En particulier, à fréquence d'excitation constante (800 Hz) pour le  $C_{16}\text{TAB}$ , le module élastique augmente avec la concentration de 20 à 50 mN/m ( $c=0,1$  à 1 mM), valeurs qui sont proches de celles obtenues par Fruhner *et al.* [30] (cf. Figure I.24). A concentration fixe ( $c=0,63$  mM) et fréquence d'excitation variée de 1 à 10 kHz, le module élastique reste constant (environ 40 mN/m), mais les valeurs du module visqueux obtenues sont négatives dues à l'usage d'un modèle rhéologique inadéquat. Les mesures pour le  $C_{12}\text{TAB}$  (a) donnent des résultats très proches de ceux obtenus par Stenvot & Langevin [81] (cf. Figure I.23) pour une même fréquence d'excitation et des plages de concentrations identiques.

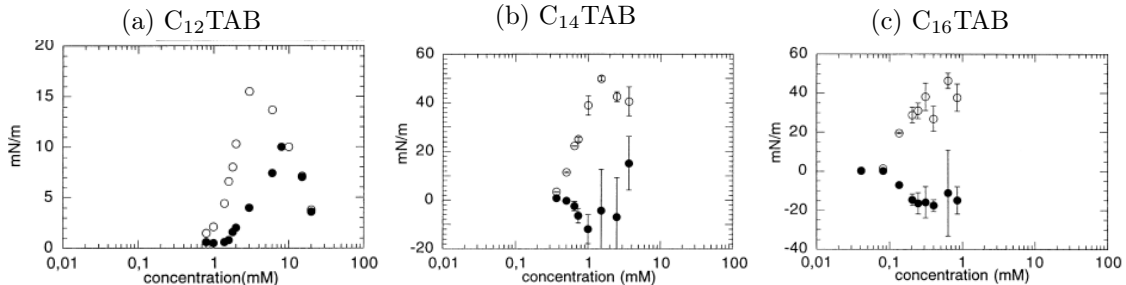


FIGURE I.22 – Parties réelles  $\circ$  et imaginaires  $\bullet$  des modules visco-élastiques du  $C_{12}\text{TAB}$  (a),  $C_{14}\text{TAB}$  (b) et  $C_{16}\text{TAB}$  (c) pour une fréquence de 800 Hz. Monroy *et al.* [68].

Dans le cadre de l'étude de la stabilité dynamique de mousses à partir de solutions de n-alkanols, Malysa *et al.* [58] étudient en particulier l'élasticité de Marangoni  $E_M$  (similaire à l'élasticité de Gibbs mais à l'état de non-équilibre, i.e. lorsque l'interface déformée n'est pas en équilibre avec la phase liquide), d'amplitude effective  $E_{\text{eff}}$  (l'amplitude des



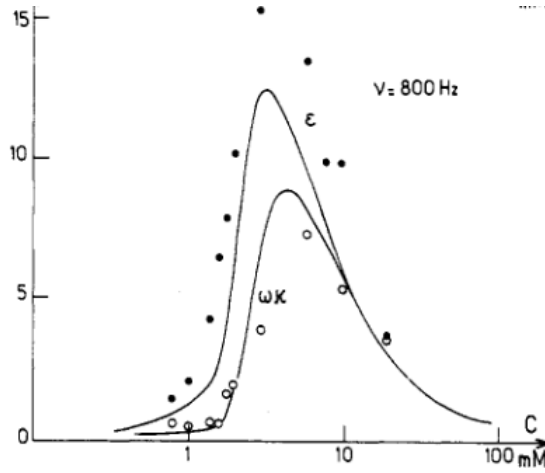


FIGURE I.23 – Parties réelles • et imaginaires ◦ des modules visco-élastiques du  $C_{12}TAB$  en fonction de la concentration, pour une fréquence de 800 Hz. Stenvot & Langevin [81].

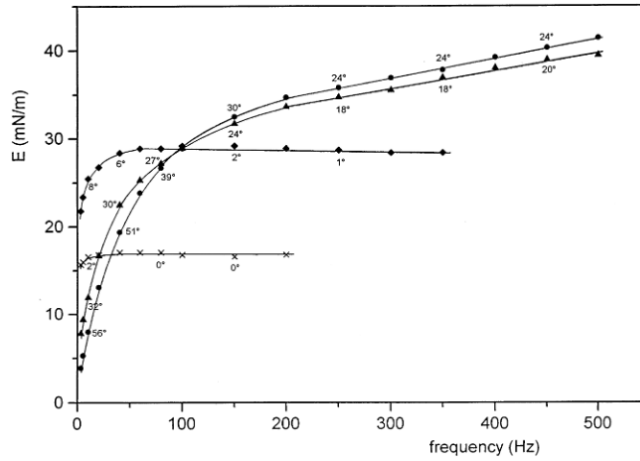


FIGURE I.24 – Module élastique du  $C_{16}TAB$  en fonction de la fréquence d'excitation. ◦ 1mM,  $\Delta$  0,6 mM,  $\diamond$  0,1 mM,  $\times$  0,01 mM. Fruhner *et al.* [30].

forces élastiques induites pour un système donné à une fréquence de perturbations extérieures et une concentration surfacique imposées). Ils montrent que  $E_M$  augmente avec la concentration, avec le temps d'adsorption à la surface de la bulle et avec la fréquence des perturbations externes imposées. De plus, le maximum d'amplitude élastique  $E_{eff}$  est atteint pour des longueurs de chaînes carbonées comprises entre  $n=6$  et  $n=8$ .

Si l'interface est maintenant dilatée de façon uniforme (par exemple, sphérique symétrique) avec un taux de dilatation constant  $\dot{\lambda} = \frac{\ln A}{dt}$ , la partie isotrope de la contrainte de surface est donnée par :

$$\bar{\tau}_{rr}^s = \sigma + \kappa^s \dot{\lambda} \quad (I.64)$$

Cependant, si le tensioactif est soluble, les variations spatiales de  $\Gamma$  modifient les conditions aux limites et génèrent des échanges de masse entre la surface et les couches de liquide adjacentes, comme vu en section I.2.1. Dans ce cas, la dynamique de la monocouche est couplée avec l'hydrodynamique de la phase liquide, et est décrite par la loi constitutive de Boussinesq-Scriven pour une monocouche considérée newtonienne :

$$\bar{\tau}^s = \sigma \mathbf{I}^s + (\kappa^s - \eta^s) (\mathbf{I}^s : \mathbf{D}^s) \mathbf{I}^s + 2\eta^s \mathbf{D}^s \quad (I.65)$$

$$\mathbf{D}^s = \frac{1}{2} (\nabla_s \mathbf{u}_s + {}^T \nabla_s \mathbf{u}_s)$$

Avec  $\mathbf{I}^s$  la matrice identité,  $\kappa^s = E''/\omega$  et  $\eta^s$  les viscosités de cisaillement et dilatation de surface respectivement. En général,  $\kappa^s$  est supérieure à  $\eta^s$ . En introduisant le module  $E$

dans  $\nabla_s \sigma$ , on obtient la relation suivante :

$$\nabla_s \sigma = E \nabla_s (\ln A) \quad (\text{I.66})$$

Cette relation permet de coupler l'équation de transport du tensioactif (équation.I.27) et l'équation de la quantité mouvement (équation I.67) via le terme  $\nabla_s \cdot \bar{\tau}^s$

$$\frac{\partial(\rho^s \mathbf{u}_s)}{\partial t} + \nabla_s \cdot (\rho^s \mathbf{u}_s \mathbf{u}_s) - \nabla_s \cdot \bar{\tau}^s = \mathbf{n} \cdot \bar{\tau} \quad (\text{I.67})$$

### I.3 Influence des tensioactifs sur différents écoulements diphasiques

Cette section synthétise différents résultats de recherches portant sur l'ajout de tensioactifs en écoulements diphasiques, du jet liquide en écoulement gravitaire simple à l'atomisation assistée, en passant par des sprays obtenus par injection liquide pressurisée. Les études qui suivent sont particulièrement intéressantes car elles peuvent contribuer à la compréhension des phénomènes physiques obtenus dans le cadre de notre recherche. Elles permettent également de cerner les grandeurs d'intérêt qui régissent le transport d'un tensioactif dans une nappe liquide et de maximiser les effets du dopage en atomisation assistée (sur le développement des instabilités et la formation de gouttes notamment).

#### I.3.1 Ecoulements de nappes liquides

Marmottant *et al.* [62] ont étudié l'influence d'un tensioactif sur la brisure d'une nappe liquide (expérience de Savart, Figure b). L'impact vertical d'un jet liquide de diamètre  $d_0$  à une vitesse  $u_0$  sur un disque horizontal forme une nappe liquide circulaire (horizontale également), dont le diamètre dépend des conditions initiales et de la tension de surface en bord de nappe (cf. schéma Figure a). Ainsi, la tension de surface à l'extrémité du disque liquide peut être estimée à partir d'une mesure du diamètre de la nappe. Sans tensioactif, ce dernier évolue comme le carré de la vitesse initiale jusqu'à une vitesse critique, puis diminue du fait de l'apparition d'une instabilité de cisaillement en surface de la nappe causée par la friction de l'air sur le liquide (Figure c). Avec dopage à forte concentration, le diamètre évolue également comme le carré de la vitesse liquide injectée mais avec un coefficient plus important. A faible concentration en revanche, le diamètre suit la même évolution qu'en l'absence de tensioactif aux faibles vitesses liquides, puis croît plus vite qu'aux concentrations élevées pour des vitesses supérieures.

Les auteurs montrent que le rapport du diamètre de la nappe et du diamètre initial du jet liquide est proportionnel au nombre de Weber ( $We = \frac{\rho_L u_0 d_0}{\sigma}$ ) pour  $We < 1000$ , basé sur la tension de surface à l'extrémité de la nappe. Le diamètre mesuré résulte donc d'une compétition entre quantité de matière du fluide et tension de surface. Puis un modèle basé sur la dynamique de diffusion des tensioactifs du fluide vers l'interface permet d'établir le temps caractéristique de diffusion (i.e. le temps nécessaire pour atteindre la concentration d'équilibre à la surface) :

$$t_D = \frac{3\pi}{4D} \left( \frac{\Gamma_\infty}{C_0} \right)^2 \quad (\text{I.68})$$

avec  $\Gamma_\infty$  la concentration surfacique de saturation et  $C_0$  la concentration volumique dans la solution. La tension de surface à l'extrémité de la nappe peut en être déduite :

$$\sigma_{rim} = \frac{\rho u_0^2 d_0^2}{8\beta D} \quad (\text{I.69})$$

avec  $\beta = \text{cst}$  et  $D$  le diamètre de nappe. Enfin, il est observé que la vitesse de récession en bord de nappe diminue jusqu'à 17% par rapport au cas en eau pure, ce qui traduit la présence d'un effet Marangoni.

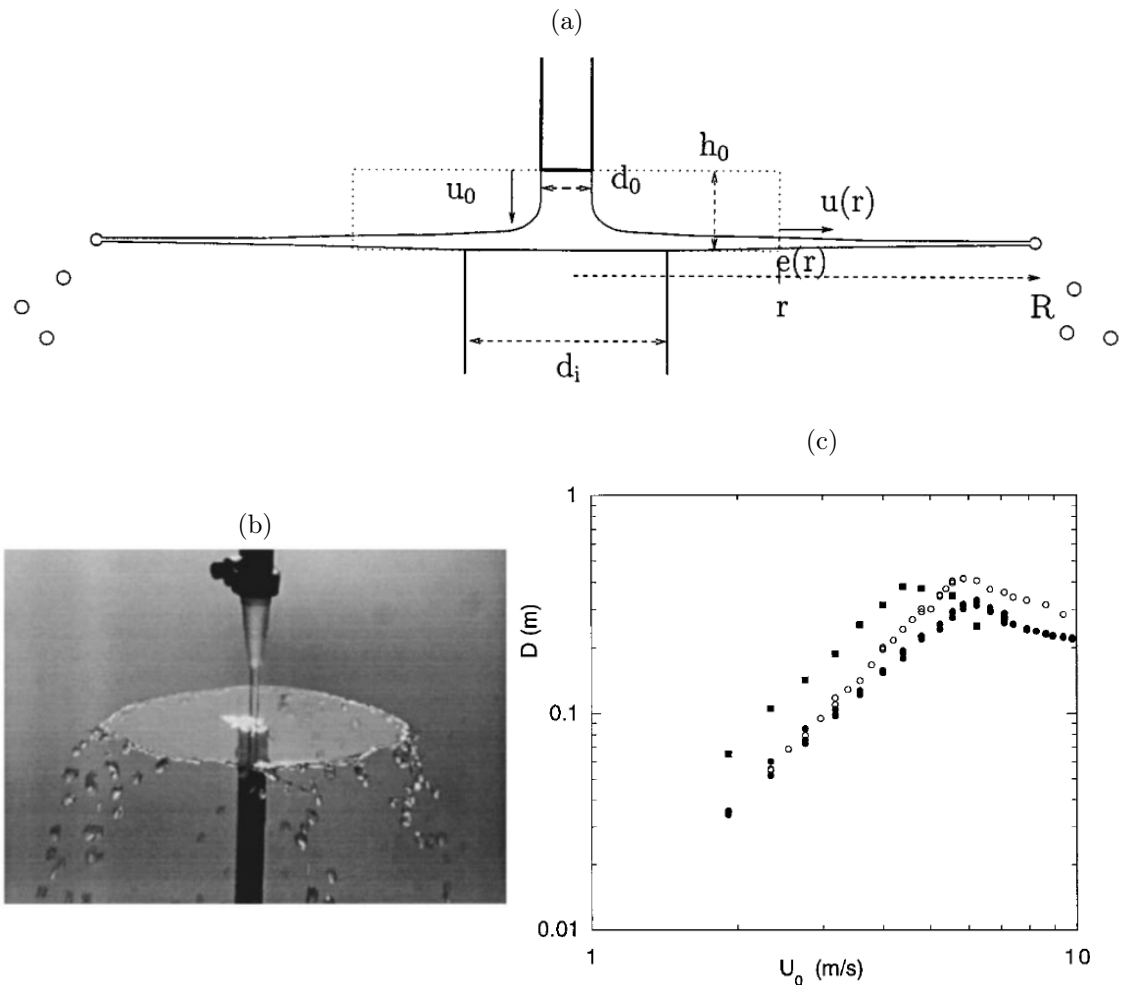


FIGURE I.25 – (a) Schéma et (b) photographie de l'expérience de Savart. (c) Diamètre de la nappe liquide fonction de la vitesse initiale du jet pour différentes concentrations de tensioactifs. • Eau pure. ◦ Solution Ajax diluée à 1% en volume, ◻ diluée à 20% en volume. [62]

### I.3.2 Filaments liquides

Dravid *et al.* [25] ont modélisé les effets de l'ajout d'un tensioactif insoluble sur la brisure d'un filament liquide en gouttes, perturbé par des ondes sinusoïdales. Les auteurs caractérisent un tensioactif par le coefficient élastique et le nombre de Peclet, rapport caractéristique des temps de convection et de diffusion. A faible viscosité liquide, un effet Marangoni est présent si le nombre de Marangoni dépasse un seuil critique ( $Ma=0,45$ ) et si l'adsorption du tensioactif est suffisamment lente pour générer un gradient de concentration surfacique.

Les résultats montrent que lorsque ces conditions sont vérifiées (pour  $Re_L=100$  et  $Pe=1000$ ), l'effet Marangoni inverse la récession du flux liquide au moment du pincement du jet (dans le sens  $z>0$ , cf. Figure I.26b), et permet de retarder la brisure du jet, ce qui conduit également à l'augmentation de la taille de la goutte satellite formée suite à la brisure. Lorsque le module élastique est trop faible ( $Ma=0,045$ , Figure I.26a), la contrainte de Marangoni n'est pas suffisante pour empêcher la récession du liquide. Ce qui conduit à la diminution de la taille de la goutte satellite formée, comme l'ont montré auparavant Craster *et al.* [19] et Xue *et al.* [94]. Ces derniers ont réalisé des simulations numériques de rupture d'un filament liquide en variant le nombre Marangoni sur une large plage (0,6-1,4). Ils montrent notamment qu'une goutte satellite se forme lors de la brisure du filament à partir d'un  $Ma$  critique, multipliant sa taille d'un facteur 4 à 5. Par ailleurs, le temps de

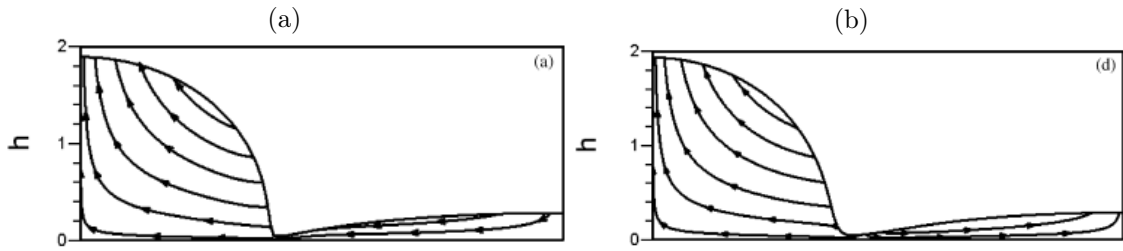


FIGURE I.26 – Lignes de courant d’un filament liquide simulé par Dravid *et al.* [25], pour différentes valeurs du nombre de Marangoni.  $Re = 100$ ,  $Pe = 1000$ , (a)  $Ma = 0,045$  et (b)  $Ma = 0,45$ .

brisure est toujours allongé en présence de tensioactif, et ce d’autant plus que son module élastique est grand. Ces études peuvent donc contribuer à une meilleure compréhension du rôle de l’effet Marangoni dans la brisure d’un jet liquide. De même, Battal *et al.* [6] montrent, dans le cas de l’écoulement d’un jet laminaire gravitaire ( $1000 < Re_L < 2000$ ), que l’effet Marangoni dû à un fort gradient de concentration en monomères induit une réduction de la vitesse interfaciale - selon l’axe de l’écoulement - jusqu’à 30%. Cependant, l’effet est présent sur une plage de distances axiales à l’injecteur restreinte : trop proche de l’injecteur, les monomères n’ont pas le temps d’être adsorbés. Au delà de la zone à fort gradient de concentration de surface, ce dernier est nul car la concentration devient uniforme le long du jet. Sur la même expérience ( $Re_L = 1820$ ), Davies & Makepeace [21] ont obtenu une réduction de 24% de la vitesse interfaciale, et Jobert & Leblond [41] ont observé les mêmes effets avec du SDS à 0,5 et 1 fois la CMC, pour un écoulement turbulent ( $2340 < Re_L < 3060$ ). Weiss *et al.* [93] ont également montré que des concentrations supérieures à la CMC favorisent le transport de monomères à l’interface, par dissociation des micelles présentes dans le fluide.

L’ensemble de ces résultats fournit les informations suivantes quant aux paramètres contrôlant la dynamique d’adsorption d’un tensioactif dans un jet liquide :

- un tensioactif à forte concentration (au delà de la CMC, [93]) et faible concentration surfacique de saturation présente une dynamique de transport plus rapide dans l’expérience de Savart (équation I.68).
- une diminution de la vitesse et du diamètre de l’injecteur liquide accélèrent l’adsorption du tensioactif à la surface du jet, et donc la diminution de la tension de surface (équation I.69).
- concernant la rhéologie, un module élastique élevé ( $E_0 > 0,45$ ) favorise un effet Marangoni. Mais ce critère n’est pas suffisant. Le temps d’adsorption et le régime d’écoulement sont également déterminants, bien qu’il ne semble pas y avoir de résultat quantitatif disponible dans la littérature.

### I.3.3 Injection pressurisée : influence du tensioactif sur la structure du jet et les tailles de gouttes

Sijs *et al.* [80] étudient les effets des tensioactifs sur les tailles de gouttes produites par injecteurs pressurisés. Dans le cas d’un fluide pur, la taille des gouttes est connue pour évoluer comme suit :

$$D_{50} = b\alpha^{-1/6}We^{-1/3} \quad (\text{I.70})$$

avec  $b$  le diamètre de l’injecteur,  $\alpha$  le rapport des densités gaz/liquide et  $We = \frac{\rho_L U_0^2 b}{\sigma_\infty}$  [44]. Les résultats obtenus montrent que la taille moyenne diminue avec tensioactif, mais aussi que les tailles prédites par l’équation I.70 sont systématiquement inférieures aux tailles mesurées. Dans l’équation I.70, la tension de surface d’équilibre est remplacée par la tension de surface dynamique, évaluée par la formule de Hua & Rosen [38] (cf. équation

I.46). En comparant de nouveau les mesures de tailles de gouttes au modèle (équation I.70), non plus par rapport au Weber basé sur la tension de surface d'équilibre mais dynamique à  $t=20$  ms - qui est le temps typique de brisure de la nappe liquide -, un bon accord est cette fois-ci observé avec le modèle.

Ellis *et al.* [28] ont conduit une étude similaire. En comparant l'évolution de la taille des gouttes en fonction de la tension de surface dynamique, pour des liquides purs (eau et Propan-1-ol) et des mélanges de tensioactifs, des résultats différents sont obtenus entre les fluides purs et les solutions de tensioactifs. La taille de gouttes diminue systématiquement pour les deux groupes étudiés lorsque la tension de surface est réduite, mais l'effet est plus important pour les mélanges de tensioactifs que pour les liquides purs (jusqu'à 17%). Ces résultats mettent aussi en évidence l'influence de la tension de surface dynamique sur les tailles lorsque le fluide est dopé avec un tensioactif. Concernant la structure de la nappe liquide, certains tensioactifs augmentent la longueur de brisure et réduisent les instabilités de surface par rapport à l'injection de liquides purs (voir photographies de l'expérience, Figure I.27). Les auteurs remarquent que le tensioactif qui contribue le plus à réduire les instabilités interfaciales est l'alkyl polyglycoside (Figure I.27), c'est également celui qui possède le plus grand module élastique ( $E_0=80$  mN/m, deux fois supérieur aux autres tensioactifs utilisés dans l'étude) ainsi qu'un coefficient de diffusion rapide.

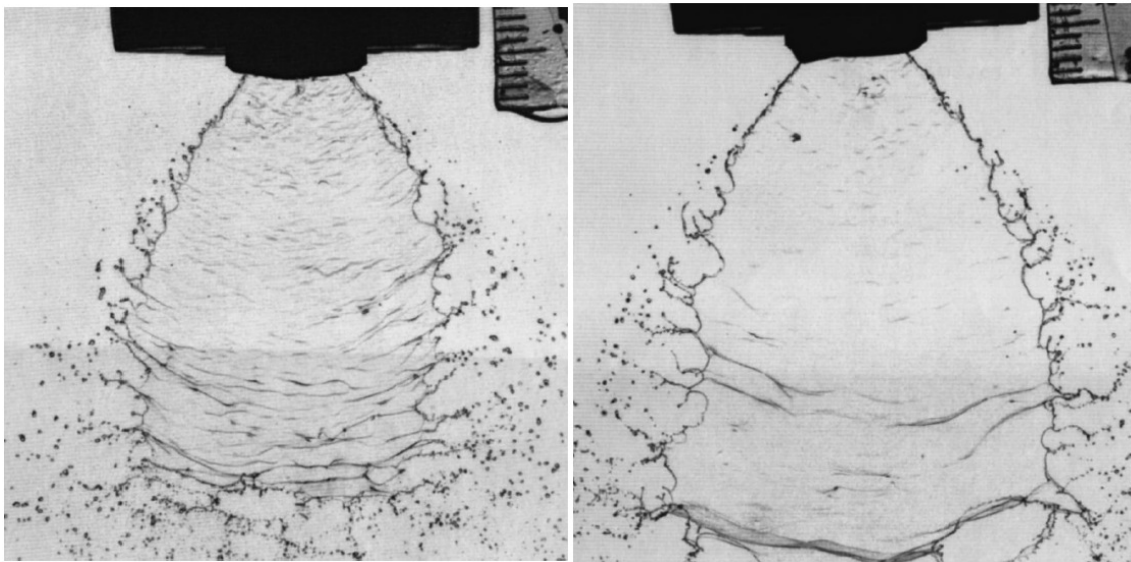


FIGURE I.27 – Photographies de sprays obtenues par Ellis *et al.* [28] : injection d'eau uniquement (gauche), d'alkyl polyglycoside à 0,5% (droite).  $P=1$  bar.

### I.3.4 Atomisation assistée

En atomisation assistée enfin, Shavit & Chigier [79] étudient l'influence de la tension de surface dynamique par ajout du tensioactif non-ionique Tergitol NP-10, pour différentes concentrations supérieures à la CMC. La tension de surface dynamique est mesurée par la technique du jet oscillant. Les mesures montrent une diminution importante et rapide de la DST avec le vieillissement de la surface : 22% à  $t=5$  ms pour une concentration de 1,5 mM, 120% à  $t=3$  ms pour  $c=6$  mM.

Les auteurs étudient dans un second temps l'influence du tensioactif sur le phénomène d'atomisation. Le tube liquide et le tube gaz coaxial ont respectivement un diamètre de 0,89 et 10 mm. Les vitesses gaz et liquide en sortie d'injecteur sont respectivement de 30 m/s et 1,28 m/s ou 40 m/s et 2,89 m/s. La longueur de brisure et les tailles de gouttes sont mesurées par analyse d'image, la fréquence et l'amplitude de flapping par la méthode d'atténuation laser (laser He-Ne). Les mesures de fréquences sont effectuées à une distance axiale de 0,5 fois la longueur de brisure moyenne du jet liquide, les amplitudes de *flapping*

à des distances axiales de un à trois quarts celle-ci. La longueur de brisure ne varie pas avec ajout de tensioactif. L'explication proposée par les auteurs est que l'étirement du jet, l'augmentation de l'amplitude de flapping avec la distance axiale et/ou la formation de membranes liquides en extrémité de jet contribuent à un fort étirement de la surface dans la zone de brisure, et donc à une faible concentration interfaciale en monomères. Ainsi la tension de surface dynamique dans la région de brisure pourrait augmenter jusqu'à la tension de surface de l'eau pure, ce qui expliquerait l'absence d'effet du tensioactif sur la longueur intacte. Cette hypothèse est illustrée de façon conceptuelle par les auteurs (Figure I.28).

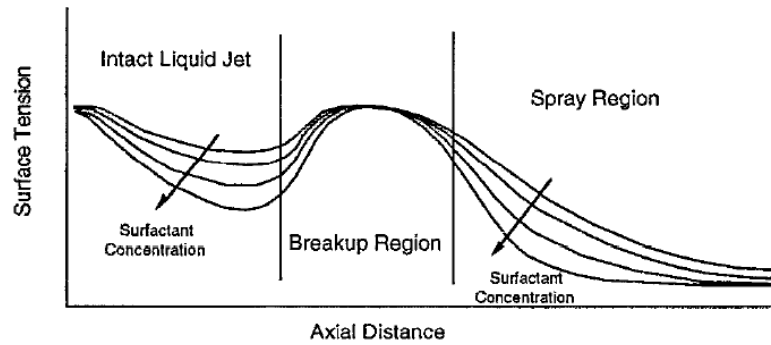


FIGURE I.28 – Description conceptuelle de l'évolution axiale de la tension de surface du jet [79]

Un net effet du tensioactif est en revanche observé sur les tailles de gouttes mesurées à des distances axiales comprises entre 1,5 et 5 fois la longueur de brisure moyenne. La Figure I.29 montre l'évolution du diamètre de Sauter moyen (SMD) avec la distance axiale à l'injecteur et pour différentes concentrations. La mesure est réalisée sur un diamètre de spray. Une diminution jusqu'à 75% est observée entre l'eau pure et la plus forte concentration (12 mM), à  $U_L=2,89$  m/s et  $U_G=40$  m/s. Au delà d'une certaine distance axiale (entre deux et trois fois la longueur de brisure moyenne), les gouttes sont regroupées en deux catégories de tailles. Pour la vitesse liquide 2,89 m/s par exemple, nous observons un groupe avec un SMD compris entre 400 et 500  $\mu\text{m}$ , et un second entre 600 et 700  $\mu\text{m}$  (Figure I.29, bas). La raison probable est qu'une goutte peut subir une seconde brisure si son nombre de Weber atteint un Weber critique :

$$We_{cr} \propto \rho_G U_R^2 D_{90} / \sigma \quad (\text{I.71})$$

avec  $U_R$  la vitesse relative de la goutte, et  $D_{90}$  son diamètre tel que 90% des gouttes ont un diamètre inférieur, et  $\sigma$  la tension de surface. L'hypothèse avancée est que le nombre de Weber local augmente avec la distance axiale du fait de la réduction de la tension de surface dynamique, jusqu'à atteindre le nombre de Weber critique. C'est la raison avancée pour laquelle un groupe de plus petites tailles apparaît aux fortes concentration : celles-ci résultent de brisures secondaires. Il n'y a pas de troisième brisure observée car une fois la seconde opérée, le diamètre caractéristique des gouttes en résultant diminue fortement et donc le Weber local également ce qui implique  $We_{local} \ll We_{cr}$ .

Concernant le *flapping*, sa fréquence augmente à faible concentration uniquement. L'amplitude augmente également pour des distances axiales supérieures à 0,5 fois la longueur intacte et à  $U_G=30$  m/s. Il n'y a pas de variation de l'amplitude de flapping à plus forte vitesse gaz (40 m/s) car les forces aérodynamiques dominent sur les forces de tension de surface. Mais ces résultats sont limités à des conditions expérimentales restreintes (tensioactif utilisé, vitesses d'injection et géométrie). Comme mentionné par les auteurs, cette étude doit donc être étendue à d'autres espèces de tensioactifs et à des plages d'injection plus larges afin de mieux comprendre leur rôle en atomisation assistée.

Kulkarni *et al.* [45] s'intéressent à l'atomisation assistée en configuration co-axiale d'un

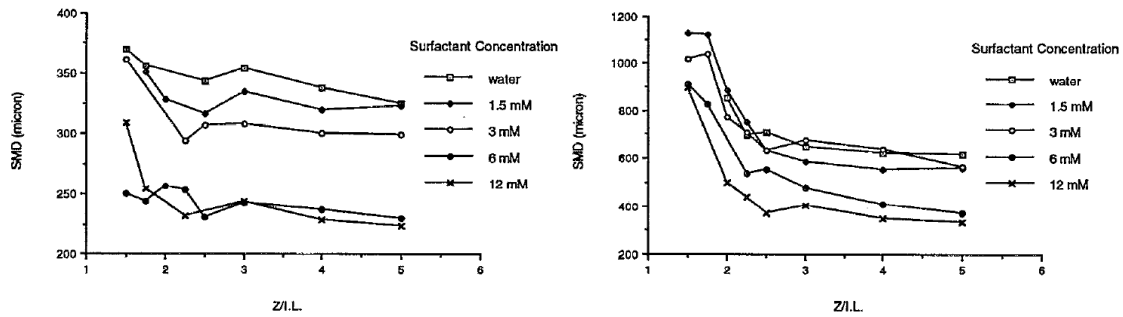


FIGURE I.29 – Évolution axiale du diamètre de Sauter moyen. Vitesses liquides : 1,28 m/s (haut), 2,89 m/s (bas). Vitesse gaz : 40 m/s. [79]

mélange liquide eau-urée avec ajout de tensioactifs. Ici, l'injecteur est à mélange interne : il est constitué d'une seule ouverture et les deux phases sont injectées dans une chambre en amont, et non pas dans l'air ambiant (Figure I.30). L'étude se focalise sur la structure du jet liquide et les tailles de gouttes, par ombroscopie et analyse d'image. La réduction d'émissions de NOx dans les moteurs diesel dépend largement de la capacité à obtenir un spray homogène, ce qui peut être amélioré par réduction de la tension de surface avec ajout de tensioactifs.

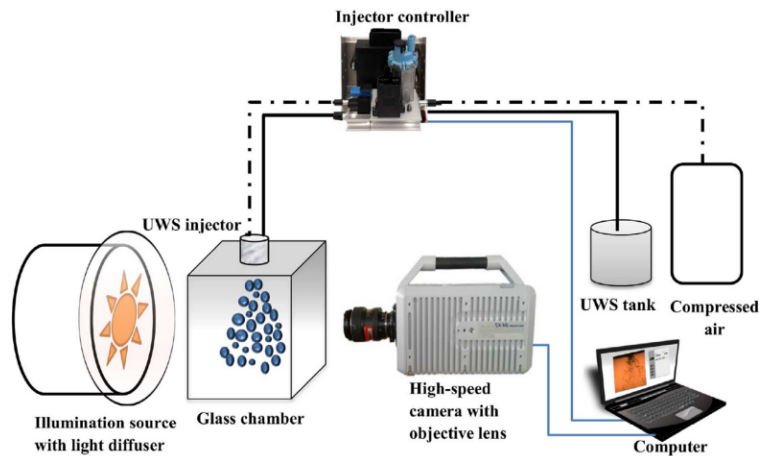


FIGURE I.30 – Schéma du dispositif expérimental utilisé par Kulkarni *et al.* [45].

Le principal effet des tensioactifs observé sur la structure du jet liquide est la réduction de la longueur de brisure, causée par le passage d'un régime de brisure du jet de type Rayleigh à un régime de brisure en membranes lorsque la tension de surface est réduite. Ce changement de brisure de type membrane semble conduire à une rupture du jet précoce comparée à une brisure de type Rayleigh. Une corrélation est mise en évidence entre changement de régime de brisure, et nombre de Weber basé sur la tension de surface dynamique. Ce changement de régime de brisure du jet conduit à une meilleure distribution spatiale des gouttes pour les différents régimes d'injection testés. A fort  $M$  (ratio des pressions dynamiques), la réduction de la tension de surface génère une population de fines gouttelettes, avec une distribution de tailles plus resserrée autour de la moyenne comparé au cas sans tensioactif (de l'ordre de 43%), et donc une meilleure atomisation du jet liquide. Les origines sont multiples : dans ces conditions, le phénomène d'épluchage de l'interface génère de plus fines gouttelettes lorsque la tension de surface est réduite ([62], [35]). Mais la rupture du jet liquide en membranes et les atomisations secondaires des gouttes peuvent - d'après les auteurs -, également être responsables de ces changements de granulométrie.

### I.3.5 Brisures de gouttes

Zhao *et al.* [95] ont plus spécifiquement étudié l'atomisation secondaire d'une goutte chargée en tensioactif, induisant la transition de sa brisure en membrane à une brisure par cisaillement. Une goutte est formée et lâchée verticalement dans un courant d'air horizontal. Le mode d'atomisation secondaire dépend de la compétition entre les instabilités de Rayleigh-Taylor (brisure membrane), et Kelvin-Helmholtz (brisure par cisaillement). Par une analyse d'instabilité linéaire plane et en négligeant l'effet de la viscosité, les taux d'amplification des modes les plus amplifiés pour les instabilités de Kelvin-Helmholtz et Rayleigh-Taylor sont respectivement :

$$\omega_{km} = \frac{\rho_G^{3/2} U_G^3}{9\sqrt{3} \rho_L^{1/2} \sigma} \quad (\text{I.72})$$

$$\omega_{Rm} = \left( \frac{2}{3\sqrt{3}} \right)^{1/2} \left( \frac{\rho_L}{\sigma} \right)^{1/4} \left( 4, 2 \frac{\rho_G U_G^2}{D_0 \rho_L} \right)^{3/4} \quad (\text{I.73})$$

où  $\sigma$  est la tension de surface dynamique de la goutte et  $D_0$  son diamètre initial. La transition d'une brisure membrane à cisaillement a lieu lorsque  $\omega_{km}/\omega_{Rm}=1$ . Ce rapport peut s'exprimer en fonction du nombre de Weber uniquement, basé sur la tension de surface dynamique :

$$We_r = \frac{\rho_G U_G^2 D_0}{\sigma} \quad (\text{I.74})$$

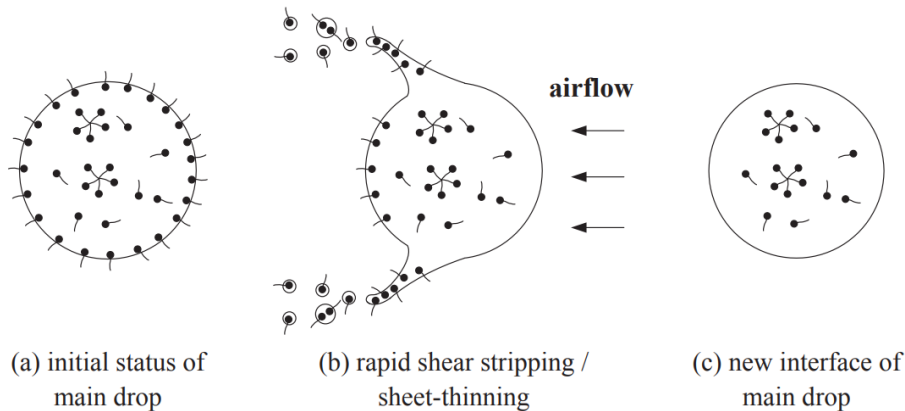


FIGURE I.31 – Evolution de la concentration interfaciale en tensioactifs à l'interface d'une goutte subissant un épluchage rapide dû au phénomène de cisaillement. [95]

La transition membrane-cisaillement évolue donc comme l'inverse de la tension interfaciale de la goutte. Autrement dit, la réduction de  $\sigma$  par un tensioactif augmente le nombre de Weber critique responsable de la transition entre les deux régimes de brisure, lorsque tous les autres paramètres sont égaux par ailleurs. De plus, l'effet de l'épluchage de l'interface de la goutte réduit la concentration interfaciale en tensioactifs, et donc ramène la tension de surface à celle de l'eau pure si le temps d'adsorption est faible devant le temps typique d'arrachement de l'interface, comme illustré en Figure I.31.

#### Synthèse :

Différentes études portent donc sur l'influence des tensioactifs sur la formation de sprays. Ces résultats sont spécifiques aux expériences vues ci-dessus. Ils ne fournissent que des pistes possibles quant au choix des conditions expérimentales de l'étude que nous proposons en atomisation assistée. Plusieurs points importants peuvent être retenus :



- Afin que la tension de surface agisse sur une instabilité, le temps d'adsorption du tensioactif doit être plus rapide que le temps de développement de l'instabilité en question.
- En atomisation assistée, la fréquence et l'amplitude de l'instabilité de *flapping* augmentent jusqu'à une vitesse gaz de 40 m/s, à partir de laquelle les forces capillaires sont négligeables devant les forces aérodynamiques. Il s'agira donc dans notre étude de varier les vitesses d'injection liquide et gaz sur de larges plages.
- La taille de gouttes moyenne diminue de façon importante à forte concentration, l'hypothèse émise est que la réduction de la tension de surface des gouttes conduit à des brisures secondaires, à une intensification de l'épluchage et du flux de gouttes issues de ce mécanisme (au delà d'une certaine vitesse gaz), ainsi qu'à des changements de régime de brisure du jet liquide. Un effet sur la taille des gouttes est systématiquement mesuré dans les études citées.
- La réduction de la tension interfaciale par les tensioactifs peut en outre changer le régime de brisure d'une goutte.

## I.4 Objectifs de l'étude

### I.4.1 Paramètres d'intérêt régissant le transport d'un tensioactif en atomisation assistée

Dans le cadre de notre étude, plusieurs indications quant à la nature et la concentration des tensioactifs, ainsi que des conditions de l'écoulement, peuvent être déduites de la littérature afin de maximiser les effets sur le processus d'atomisation :

- Paramètres d'injection hydrodynamiques : le diamètre de l'injecteur liquide et la vitesse doivent être relativement faibles afin que le temps d'adsorption du tensioactif soit plus court que le développement des instabilités se développant à la surface du jet, menant *in fine* à sa rupture.
- Nature et concentration des tensioactifs :
  - les coefficients de diffusion et d'adsorption cinétique doivent être les plus faibles possibles pour obtenir une dynamique d'adsorption rapide. Ceux-ci dépendent de la nature du tensioactif mais aussi de sa concentration.
  - Le nombre d'activité de surface (correspondant au dopage maximal potentiel de l'interface) doit être élevé, ainsi que le nombre de Marangoni (rapport de l'élasticité interfaciale et de la tension de surface d'équilibre, section I.2.2) afin d'induire des modifications du comportement rhéologique de l'interface.

### I.4.2 Grandeurs expérimentales mesurées

Nous caractériserons expérimentalement le processus d'atomisation en deux temps. D'abord l'évolution de la structure du jet liquide avant rupture (longueurs de dard et de brisure, amplitude du *flapping* etc.) ainsi que les fréquences des instabilités à l'oeuvre dans sa déstabilisation (cisaillement, *flapping* et brisure du jet). Puis l'évolution du spray plus en aval permettra de collecter statistiques de tailles de gouttes, vitesses mais également taux de présence liquide et flux pour une position spatiale de mesure donnée.

## I.5 Plan de travail

### I.5.1 Choix des tensioactifs

Nous introduisons dans cette section les tensioactifs utilisés dans l'étude et leurs concentrations. Le premier objectif est, nous l'avons vu, de maximiser les effets des tensioactifs sur les grandeurs expérimentalement mesurées en atomisation. Le choix des candidats pour remplir cet objectif doit donc vérifier plusieurs conditions. Les tensioactifs utilisés doivent

présenter des temps de transport vers l'interface - tant par transfert cinétique à l'interface que par diffusion- plus courts que les temps de développement des instabilités à l'oeuvre en atomisation. Par ailleurs, la tension de surface d'équilibre doit être aussi faible que possible afin d'influer sur les mécanismes d'instabilité à la surface du jet liquide. Tant les vitesses de transport que la tension de surface dépendent de la nature du tensioactif, mais également de sa concentration. Les processus de diffusion comme de transfert cinétique sont généralement d'autant plus rapides que la concentration est importante.

Une liste de candidats répondant à ces critères est présentée dans le tableau I.1, pour différentes plages de concentrations. Différentes caractéristiques y sont présentées : les coefficients et temps typiques d'adsorption pour un transport limité par adsorption cinétique à l'interface, les coefficients de diffusion, la concentration surfacique de saturation  $\Gamma_\infty$ , la concentration micellaire critique (CMC), la tension d'équilibre du mélange  $\sigma_\infty$ . Mais également des paramètres adimensionnés : l'activité surfacique  $\Gamma_{\max}RT/\sigma_0$ , nombre adimensionnel permettant d'évaluer la capacité d'un tensioactif à abaisser la tension de surface par rapport à sa concentration surfacique de saturation. Et le nombre de Marangoni, grandeur caractéristique de l'élasticité d'une interface dopée ( $Ma=E_0/\sigma_\infty$ , cf. I.2.2). Les tensioactifs retenus sont anioniques ou cationiques, les non-ioniques ayant une cinétique trop lente. Nous avons dans un premier temps choisi les molécules SDS (Dodécylsulfate de sodium) et C<sub>12</sub>TAB (Dodecyl trimethyl ammonium bromide), car leurs temps d'adsorption sont les plus faibles dans la liste, et leurs coefficients de diffusion sont similaires et relativement élevés.

Dans le cas où les deux premiers candidats ont des effets significatifs sur le processus d'atomisation, l'objectif suivant consiste à déterminer le processus de transport limitant à l'oeuvre (transfert ou diffusion). Pour ce faire, nous avons sélectionné le C<sub>16</sub>TAB (Cetyltrimethylammonium-bromide ou Cetrimonium bromide) comme troisième candidat : celui-ci présente un coefficient de diffusion similaire aux 2 autres mais une cinétique d'adsorption cinq à dix fois plus lente (cf. Table I.1, colonne  $\tau_{\text{ads}}$ ). La méthode consiste à mettre en évidence le processus de transport limitant en raisonnant par induction. Étant donné que les vitesses de diffusion des candidats sont de même ordre de grandeur, si contrairement aux tensioactifs à cinétique d'adsorption élevée, aucun effet significatif du C<sub>16</sub>TAB sur le processus d'atomisation n'est observé pour des conditions d'injection hydrodynamiques identiques, cela signifie que l'adsorption à l'interface par cinétique joue un rôle limitant dans l'expérience. Il s'agira ensuite de comparer en détail les temps de transport aux temps de formation des instabilités en atomisation, ces données de départ ne nous fournissant que des ordres de grandeur sur les propriétés des tensioactifs.

A noter également qu'hormis le coefficient de diffusion, il est difficile de garder tous les autres paramètres "égaux par ailleurs" d'un tensioactif à un autre. L'on peut voir dans la Table I.1 que la CMC, le coefficient d'activité et le nombre de Marangoni ne sont pas toujours de même ordre de grandeur entre les trois candidats. Ce dernier traduit les effets rhéologiques (élastiques et visqueux) d'un tensioactif sur une interface eau-air. En plus de l'effet des tensioactifs sur les mécanismes à l'oeuvre en atomisation par abaissement de la tension de surface, les modifications rhéologiques de l'interface pourraient également jouer un rôle. En particulier, les effets visco-élastiques de l'interface dépendent de la concentration en tensioactif et des taux de dilatation-compression imposés à l'interface. C'est pourquoi nous tenterons également de caractériser les propriétés visco-élastiques des candidats par la suite (section III.1.2). Les nombres de Marangoni de chaque tensioactif seront fournis pour différentes concentrations (cf. Table III.2).

Choix des concentrations :

Le tableau I.2 introduit les concentrations des trois tensioactifs utilisées dans l'étude, en valeurs absolues et relatives à la CMC. Les trois candidats possèdent des valeurs de CMC très différentes (cf. Tableau I.1). Dans la suite de l'étude, les concentrations sont notées en valeurs relatives à la CMC plutôt qu'en valeurs absolues. Le C<sub>12</sub>TAB présente une valeur de tension de surface à  $c=1$  CMC ( $\sigma=32$  mN/m) inférieure à celle mesurée à  $c=2$

TABLE I.1 – Caractéristiques de tensioactifs candidats pour l'étude en atomisation assistée.

	$k_{ads}$ $\times 10^{-4} \text{ m/s}$	$k_{des}$ $\text{mol/m}^2 \cdot \text{s}$	$k_{des}/k_{ads}$ $\text{mol/m}^3$	$k$ $1/\text{s}$	$\tau_{ads}$ $\text{ms}$	$D$ $\times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$
<b>Anionic</b>						
SDS (1-8 mM)	4,5-10	$4\text{-}6 \times 10^{-4}$	1,33	150-400	2,5-6,7	100-800
<b>Cationic</b>						
C <sub>12</sub> TAB (2-50 mM)	1,47	$1,7 \times 10^{-4}$	1,14	125-1300	0,77-8	100-800
C <sub>16</sub> TAB (0,2-1 mM)	198	$1,0 \times 10^{-4}$	0,085	0,64-25,3	40-157	200-800

	$\Gamma_{\infty}$ $\times 10^{-6} \text{ mol/m}^2$	CMC $\text{mM}$	$\sigma_{\infty}$ $\text{mN/m}$	$\Gamma_{max}RT/\sigma_0$ -	Sources
<b>Anionic</b>					
SDS (1-8 mM)	10	8,1	32	0,338	[53], [42], [70]
<b>Cationic</b>					
C <sub>12</sub> TAB (2-50 mM)	3,7	15	40	0,124	[54], [70], [8]
C <sub>16</sub> TAB (0,2-1 mM)	3.67	0,98	38	0,105	[85], [83], [69], [8]

CMC ( $\sigma=39 \text{ mN/m}$ ). Par ailleurs, la valeur minimale théorique de  $\sigma$  pour ce tensioactif est comprise entre 38 et 40 mN/m. Il s'agit donc d'une erreur de mesure. Dans la suite de l'étude, la valeur indiquée pour une concentration  $c=1 \text{ CMC}$  de C<sub>12</sub>TAB sera celle théorique, i.e.  $\sigma=39 \text{ mN/m}$ .

Dans un premier temps, les tensioactifs sont injectés jusqu'à de fortes concentrations (à la CMC ou au delà), afin de maximiser leurs chances d'être adsorbés à l'interface. Les concentrations de SDS (de 20 à 100% de la CMC par pas de 20%) sont variées par faibles intervalles afin d'obtenir une évolution des grandeurs expérimentalement mesurées avec la concentration. En revanche, reproduire toutes les mesures réalisées dans cette étude avec autant de concentrations différentes pour chaque tensioactif est très coûteux en temps, ainsi pour le C<sub>12</sub>TAB n'ont été retenues qu'une concentration faible (20% CMC) et deux fortes (100 et 200% CMC). Concernant le C<sub>16</sub>TAB, l'intérêt de ce tensioactif étant de montrer le processus limitant opérant, une seule concentration élevée a été sélectionnée.

SDS	C (mM)	1.62	3,24	4,86	6,48	8,1
	% CMC	20	40	60	80	100
C <sub>12</sub> TAB	C (mM)	3	15	30		
	% CMC	20	100	200		
C <sub>16</sub> TAB	C (mM)	1,84				
	% CMC	200				

TABLE I.2 – Concentrations des tensioactifs utilisés dans l'étude

### I.5.2 Choix des conditions d'injection hydrodynamiques

Cette section introduit les conditions d'injections utilisées au cours de l'étude, puis les régimes d'instabilités qui ont lieu dans ces conditions. L'injecteur à géométrie co-axiale

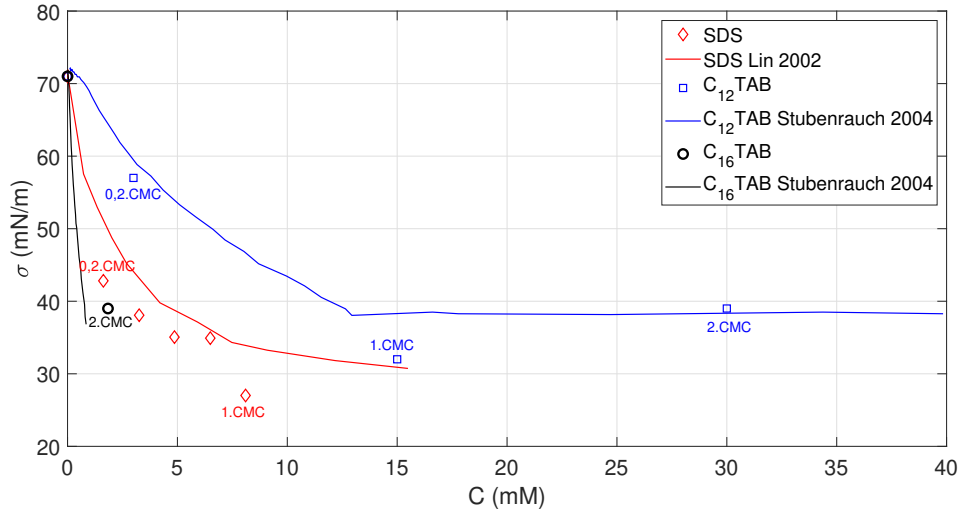


FIGURE I.32 – Tensions de surface mesurées pour les tensioactifs utilisés dans l'étude, et comparaisons avec les données de la littérature [74] pour le SDS, [83] pour les  $C_n$ TAB.

sera utilisé tout au long de cette étude, car il demande beaucoup moins de volume liquide à injecter en comparaison de l'injecteur plan pour obtenir une granulométrie équivalente. Ce qui implique de plus faibles quantités de tensioactif et un coût moins important par expérience.

La géométrie de l'injecteur sera gardée constante avec un diamètre liquide du tube interne de 5 mm et une section du tube gaz co-axial de 5 mm. Il s'agit ensuite de sélectionner des plages de vitesses pour lesquelles le développement des instabilités est suffisamment faible afin de permettre au tensioactif de migrer vers l'interface. Pour des vitesses liquides de 0.1 à 0.3 m/s et des vitesses gaz de 10 à 50 m/s, les temps caractéristiques de développement des vagues de type Kelvin-Helmholtz et Rayleigh-Taylor sur ces plages de vitesses sont de l'ordre de  $10^{-3}$ - $10^{-2}$  s, calculés d'après les travaux de Ben Rayana [7] et Hong *et al.* [36] respectivement. Par ailleurs, le mode de l'instabilité de Kelvin-Helmholtz est contrôlé par l'épaisseur de vorticit  gaz dans ces conditions : le nombre de Weber bas  sur l' paisseur de vorticit  gaz v rifie  $We_\delta \gg 1$  (avec  $We_\delta = \rho_G U_G^2 \delta / \sigma$ ). Dans ce cas, la formation des vagues ne d pend pas de la tension de surface ([89], [90]). A priori, les tensioactifs ne devraient donc pas impacter la formation des vagues par cisaillement. Concernant le temps de brisure du jet liquide, les donn es exp rimentales de Delon [22] sur l'injecteur que nous utiliserons dans l' tude donnent une longueur de brisure moyenne de 10   30 mm pour une vitesse liquide de 0,28 m/s, correspondant   un temps caract ristique de brisure de l'ordre de  $10^{-1}$  s.

Si l'on compare ces temps typiques   ceux de la cin tique d'adsorption des tensioactifs s lectionn s (cf Tableau I.1), nous constatons que les temps du SDS et  $C_{12}$ TAB sont de l'ordre de  $10^{-3}$ - $10^{-2}$  s. Il semble donc que ces plages de vitesses soient ad quates pour permettre au tensioactif d' tre adsorb  avant la brisure du jet liquide. Il n'est pas certain en revanche qu'ils puissent agir sur les instabilit s de Rayleigh-Taylor et *in fine* sur le m canisme d' pluchage, car le temps de formation de ces vagues est proche de celui d'adsorption des tensioactifs.

De plus, ces conditions permettent  galement un contr le des fr quences d'instabilit s de KH et *flapping*   partir de la vitesse gaz. En effet, pour la g om trie utilis e dans cette  tude, une vitesse gaz dans la plage 23-57 m/s et une vitesse liquide de 0,1   0,3 m/s, le nombre de Weber a rodynamique est compris entre 10 et 360. Le rapport des pressions dynamiques varie quant   lui entre 8 et 67. Un nombre de Weber a rodynamique (cf.  quation

I.9b) supérieur à 1 et un rapport des pressions dynamiques supérieur à 5 correspondent à une instabilité de cisaillement contrôlée par un mécanisme de confinement (Matas *et al.* [66]). Pour des vitesses gaz suffisamment élevées, les épaisseurs gaz et liquide en sortie d'injecteur vérifient  $\delta_G \ll \delta_L$  et la fréquence est supposée varier avec la vitesse gaz comme  $f_{KH} \approx U_G^{3/2}$ . Nous confirmerons cette loi d'échelle à partir des résultats expérimentaux obtenus.

Concernant l'instabilité de *flapping*, nous avons vu que Delon *et al.* [23] ont mis en évidence deux régimes (cf. Figure I.6) : le premier dépend d'une instabilité de cisaillement asymétrique et la fréquence augmente avec  $U_G$ . Dans le second (dit opportuniste), la fréquence est indépendante de la vitesse gaz et n'est pas contrôlée par l'instabilité de KH (voir Figure I.6). Les conditions expérimentales prévues pour l'étude correspondent au premier régime, ce qui sera ici aussi confirmé par la suite avec des mesures de la fréquence de *flapping* en fonction de la vitesse gaz.

Ainsi, les conditions d'injection que nous prévoyons d'utiliser dans l'étude devraient permettre un contrôle des fréquences de KH et *flapping* avec la vitesse gaz, et donc une variation de la fréquence d'excitation de l'interface menant potentiellement à un changement de la réponse visco-élastique de celui-ci sous l'effet des tensioactifs. Il sera par ailleurs intéressant de voir si l'évolution de ces fréquences d'instabilités avec la vitesse d'injection gaz est conservée avec l'ajout de tensioactifs.

# Chapitre II

## Matériels et méthodes

Ce second chapitre s'attache à présenter les moyens expérimentaux mis en oeuvre afin d'étudier le phénomène d'atomisation. La première partie de ce chapitre présente le banc expérimental composé d'un injecteur co-axial et des instruments de contrôle périphériques. La seconde partie est consacrée à la description du protocole de dosage des tensioactifs, d'injection du mélange réalisé puis de dé-pollution du circuit d'injection. Enfin, la troisième partie décrit les méthodes de mesures. La structure du jet liquide est analysée à partir des images obtenues par ombroscopie. Puis la caractérisation du spray est obtenue par deux méthodes. La diffraction laser qui permet d'obtenir les tailles de gouttes capturées sur un volume de mesure optique cylindrique perpendiculaire à l'écoulement, et la sonde optique Doppler mesure le temps de résidence liquide des gouttes et leurs vitesses qui permettent d'obtenir les cordes et le flux en un point de l'écoulement. Ces caractérisations ont pour objectif d'analyser et de comprendre l'effet des tensioactifs sur le processus d'atomisation. La sonde optique Doppler a fait l'objet d'une mise en oeuvre et d'une étude de fiabilité conséquentes, c'est pourquoi le chapitre suivant y sera entièrement consacré.

### II.1 Présentation du dispositif expérimental

#### II.1.1 Injecteur

L'injecteur co-axial utilisé dans cette étude est celui conçu et utilisé par Antoine Delon [22] au cours de sa thèse. La Figure II.1 de l'injecteur montre ses différents composants. Une longueur de tubes d'un mètre permet d'obtenir un écoulement gaz parallèle au flux liquide bien développé, et un nid d'abeille dans la partie fixe une bonne réduction du taux de turbulence en sortie d'injecteur. Le diamètre liquide  $H_L$  ainsi que la section gaz  $H_G$  peuvent être variés. L'injecteur liquide est en inox d'une pièce. L'injecteur gaz ne pouvant être fabriqué d'une pièce, est constitué de plusieurs pièces de PVC placées dans la partie interchangeable de l'injecteur. Dans le but de limiter les vibrations latérales du tube liquide, un système de maintien consiste en trois boucles de fil de fer de diamètre 0,2 mm reliées au cylindre PVC. La tension de chacune est ajustée par vis (schéma II.2). L'épaisseur de la lèvre séparatrice (l'extrémité du tube liquide en sortie d'injecteur) est de 0,2 mm. Les plans détaillés de l'injecteur sont disponibles dans la thèse de Delon [22]. Afin de centrer le tube liquide, quatre mesures orthogonales de la section gaz en sortie d'injecteur sont régulièrement effectuées à l'aide d'un pied à coulisse, et la tension des câbles est ajustée de sorte à obtenir des valeurs identiques.

#### II.1.2 Circuits d'injection liquide et gaz

La figure II.3 schématise l'ensemble des systèmes périphériques à l'injecteur co-axial. L'injection liquide se fait par écoulement gravitaire. Afin de conserver une grande propreté du circuit d'injection liquide, il est nécessaire d'utiliser de l'eau purifiée (contenant peu de particules polluantes), puis d'effectuer une dé-pollution du circuit après l'utilisation du

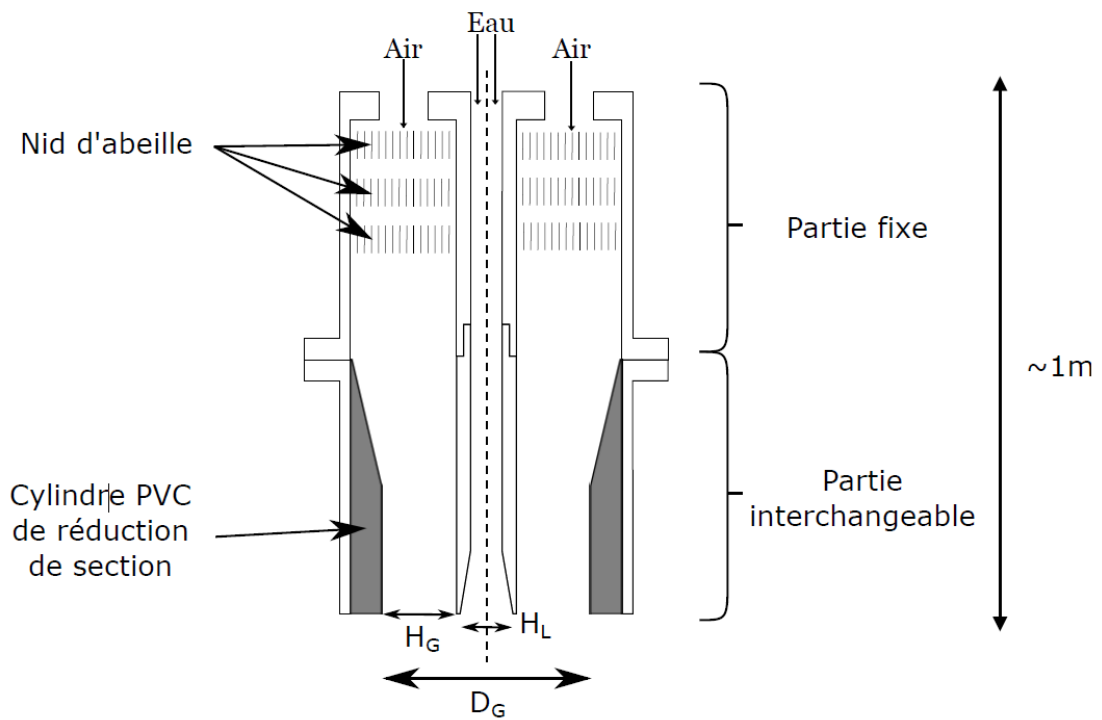


FIGURE II.1 – Schéma de l'injecteur co-axial. [22]

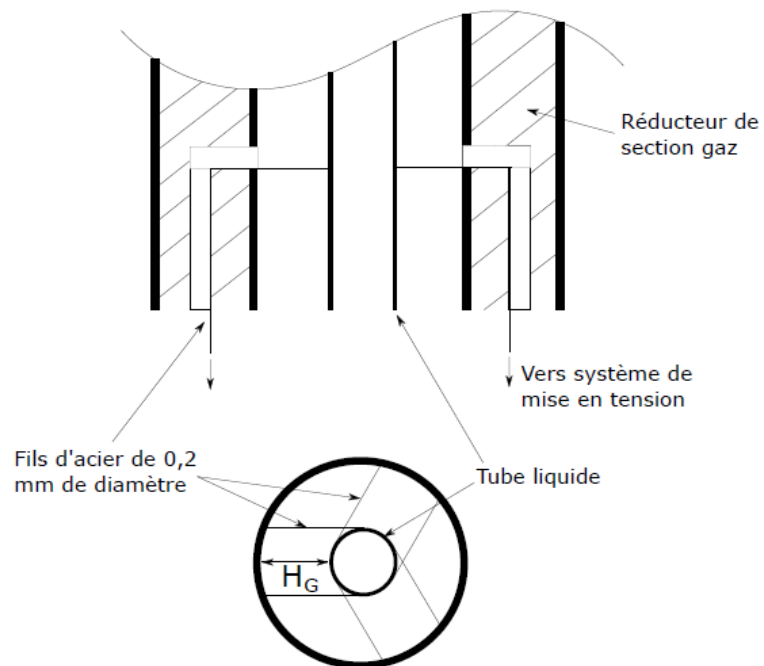


FIGURE II.2 – Schéma du système de maintien du tube liquide. Les mouvements latéraux sont empêchés par trois boucles de fils de fer mis sous tension à l'aide de vis. [22]

banc expérimental avec injection de tensioactifs (cf section suivante II.1.3). Pour ce faire, une plate-forme montée à environ trois mètres de hauteur permet d'installer un réservoir de 20 litres contenant le mélange injecté. Les éventuelles poches d'air pouvant être piégées dans les tubes lors de la mise en place du réservoir sont éliminées, en s'assurant du remplissage total du circuit d'injection. Entre le réservoir et l'injecteur, une vanne et un débitmètre permettent le contrôle du débit (modèle Oval LSF445, incertitude de mesure à 1% pour des débits allant de 8 à 100 L/h). La température du liquide injecté est mesurée pour chaque série de mesure et est toujours comprise entre 18°C et 20°C. Le circuit d'injection gaz est alimenté par le réseau d'air comprimé du laboratoire (Circuit gaz 1, Figure II.3). Le débit est contrôlé par un débitmètre massique Brooks SLA 5853S, avec une incertitude de 10% du débit mesuré. Les vitesses liquide et gaz indiquées par la suite sont donc des vitesses débitantes. Le débit maximal pouvant être atteint est de 850 L/min. Pour des débits supérieurs, une turbosoufflante est utilisée permettant d'atteindre des débits de l'ordre de 3000 L/min (Circuit gaz 2, Figure II.3).

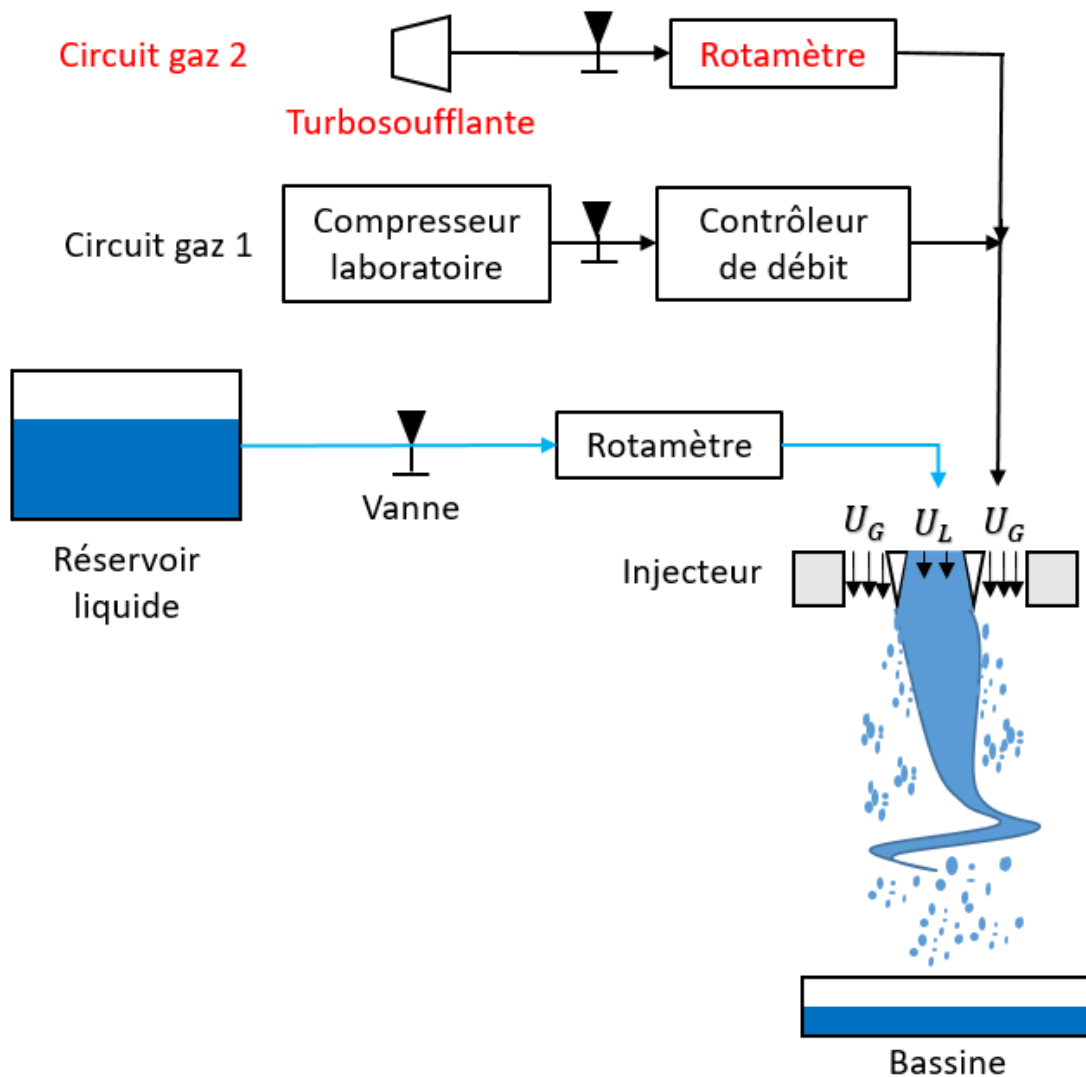


FIGURE II.3 – Schéma des périphériques à l'injecteur co-axial.



### II.1.3 Dosage des tensioactifs et processus de dépollution du circuit d'injection liquide

#### II.1.3.1 Dosage

Les tensioactifs utilisés sont solubles dans l'eau et se présentent sous forme de poudre. Ils possèdent tous une pureté d'au moins 99%. Les fournisseurs sont *Roth* pour le SDS et le C<sub>16</sub>TAB, *Alfa Aesar* pour le C<sub>12</sub>TAB. Le mélange d'un tensioactif avec de l'eau purifiée est effectué selon le protocole suivant. La masse de tensioactif correspondant à la concentration désirée est mesurée à l'aide d'une balance de précision (*Kern ABJ*), puis dans un premier temps mélangée avec un faible volume d'eau au moyen d'un agitateur magnétique. L'eau purifiée (purificateur *Dutscher Geno II*) possède une résistivité de 18 M $\Omega$ .cm. La solution obtenue est ajoutée dans le réservoir propre, puis le reste de volume d'eau nécessaire pour atteindre la concentration souhaitée est ajouté. Le mélange est ensuite agité manuellement. Le réservoir est finalement connecté à l'injecteur, et le mélange s'écoule une minute dans le circuit avant d'être prélevé en sortie d'injecteur. Une mesure de la tension de surface d'équilibre du liquide prélevé est réalisée à l'aide d'un tensiomètre manuel à anneau de Noüy (modèle *Kruss K6*, incertitude sur la mesure de  $\pm 1$  mN/m) : celle-ci doit correspondre à la tension de surface théorique correspondant à la concentration injectée.

#### II.1.3.2 Nettoyage du circuit d'injection liquide

Une fois les mesures réalisées, l'ensemble du circuit liquide est contaminé par l'agent de surface. Il est donc nécessaire d'en éliminer les résidus avant une nouvelle série de mesures. Pour cela, le bidon liquide est rincé cinq fois puis entièrement rempli d'eau purifiée. Une partie de son contenu est écoulée dans l'injecteur pendant plusieurs minutes afin de rincer le circuit. Une mesure de la tension de surface en sortie d'injecteur est de nouveau réalisée, et doit correspondre à la tension de surface de l'eau pure (71  $\pm 1$  mN/m). Elle permet de s'assurer de l'absence de résidus de tensioactifs dans le circuit liquide. La reproduction de ce protocole a par ailleurs permis de mettre en évidence que le nombre de cinq rinçages successifs du contenant est nécessaire afin d'obtenir une bonne dé-pollution du circuit d'injection liquide.

## II.2 Caractérisation de la structure du jet liquide par imagerie rapide

La technique suivante donne accès aux informations relatives à la structure du jet liquide, obtenue par ombroscopie puis l'analyse des images acquises par caméra rapide. Les grandeurs extraites sont les suivantes, illustrées sur la Figure II.4 :

- la fréquence de l'instabilité de cisaillement (Kelvin-Helmholtz), qui correspond à la fréquence de passage des vagues de l'instabilité.
- la fréquence de l'instabilité de *flapping*
- les angles d'ouverture du jet et du spray, qui correspondent aux amplitudes de déplacement radiales maximales du jet à différentes distances axiales.
- la longueur intacte du jet liquide
- la distance d'établissement du *flapping*
- la longueur de dard ou coeur liquide, i.e. la zone spatiale toujours liquide au cours du temps

Le détail de l'extraction de ces grandeurs est donné dans la section II.2.0.2.

#### II.2.0.1 Acquisition des images par ombroscopie

Cette technique consiste à placer un diffuseur de lumière entre une source lumineuse et le jet (voir schéma en Figure II.5, haut). Une bonne prise d'image permet ensuite d'obtenir

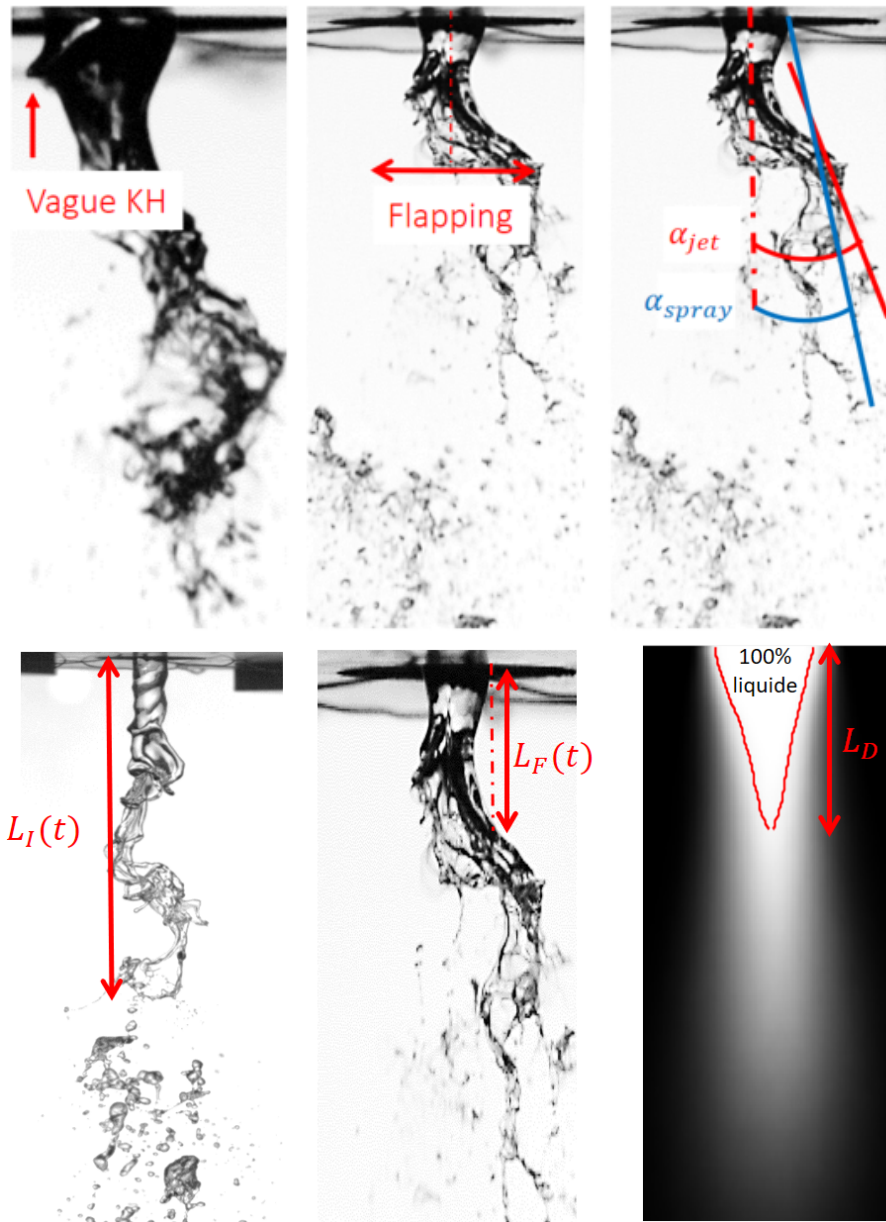


FIGURE II.4 – Illustrations des grandeurs mesurées par analyse d’image : fréquences des instabilités de Kelvin-Helmholtz et *flapping*, angle de jet (haut). Longueur intacte, d’établissement du *flapping* et de dard (bas).

un fort contraste des bords de jet ainsi qu’un fond très homogène, assurant par la suite une analyse d’image fiable qui fournira l’évolution spatiale et temporelle du jet. Pour ce faire, les réglages de la netteté, de la profondeur de champ et de l’éclairage doivent être bien choisis.

Un exemple d’acquisition est fourni en Figure II.5 (bas). L’image obtenue est une projection du jet dans le plan de la caméra, et suppose donc une axi-symétrie de la dynamique du jet. L’acquisition est réalisée par caméra rapide (modèle *Phantom MIRO*, *Vision Research*). Une seconde caméra plus performante (*Phantom V2012*, *Vision Research*) sera utilisée pour la visualisation du phénomène d’épluchage à haute résolution. Le Tableau II.1 fournit les caractéristiques des deux modèles utilisés.

### II.2.0.2 Analyse d’image

Une fois l’acquisition des images réalisée, le traitement et l’analyse de celles-ci a pour but d’en extraire l’évolution spatio-temporelle du jet liquide. La routine d’analyse d’image

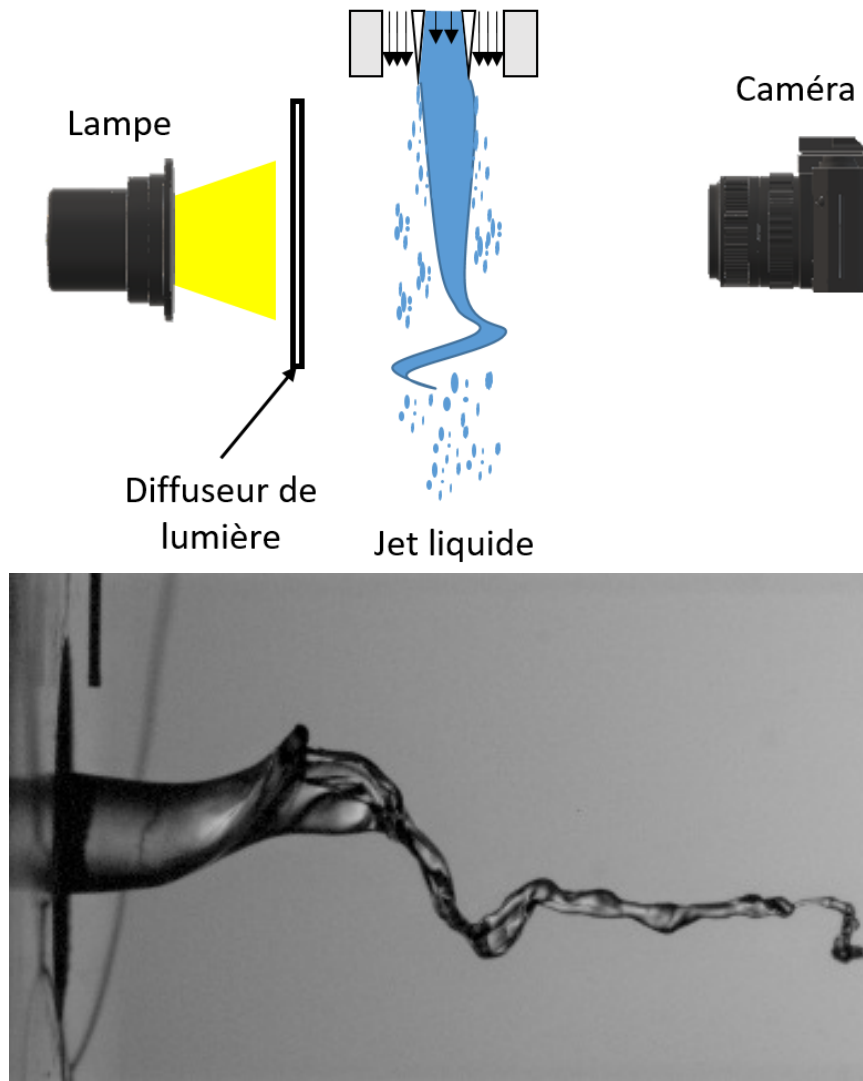


FIGURE II.5 – Schéma du principe d'acquisition des images du jet liquide par ombroscopie (haut). Exemple d'image du jet obtenue par ombroscopie (bas).

introduite ici a été développée au LEGI antérieurement à cette thèse, sur le logiciel *Matlab*. Des modifications mineures ont été apportées depuis (d'automatisation de la routine notamment). La première étape du traitement consiste à soustraire pour chaque image son fond fixe (i.e. une photo de l'injecteur sans écoulement). L'image brute du jet et l'image de fond sont recadrées pour ne traiter que la zone d'intérêt, en vue de réduire le temps de calcul. Afin d'homogénéiser l'image de fond, un filtre lui est ensuite appliqué qui remplace chaque pixel par la valeur médiane d'une surface de 3x3 pixels autour du pixel traité. Puis le fond est soustrait à l'image du jet traitée. Afin d'augmenter le contraste de l'image, les pixels d'intensités moyennes sont saturés en très faibles et très fortes intensités. Par la suite, la détection des contours du jet par gradient de seuil est opérée à l'aide d'un filtre de Canny, puis binarisée à l'aide de la méthode d'Otsu qui détermine un seuil de façon à minimiser la variance dans les zones de pixels noirs et blancs. Un exemple d'image à cette étape du traitement est disponible sur la Figure II.6 (milieu).

Ce processus conserve en revanche toutes les structures détachées du jet liquide. Il s'agit donc de détecter leurs positions et leurs tailles afin de les éliminer et ne conserver que la structure du jet liquide rattachée à l'injecteur. Dans ce but, les surfaces correspondant aux gouttes et ligaments inférieures à une valeur seuil sont supprimées. Cette valeur seuil est de l'ordre de  $10^{-2}$  à  $10^{-1}$  mm<sup>2</sup>. En effet, les tailles des structures détachées varient avec les conditions d'injection. Un exemple d'image résultante de ce processus est donné sur la

TABLE II.1 – Caractéristiques des caméras utilisées pour l'imagerie rapide.  $f_a$ =fréquence d'acquisition.

	<b>Miro</b>	<b>V2012</b>
$f_a$ (Hz)	3000-5000	30000
Nombre d'images	3000-6000	60000
Temps d'exposition ( $\mu s$ )	50-100	5-10
Résolution ( $mm^2$ /pixel)	0,1	0,02
Surface d'image (pixels×pixels)	768×480	800×768

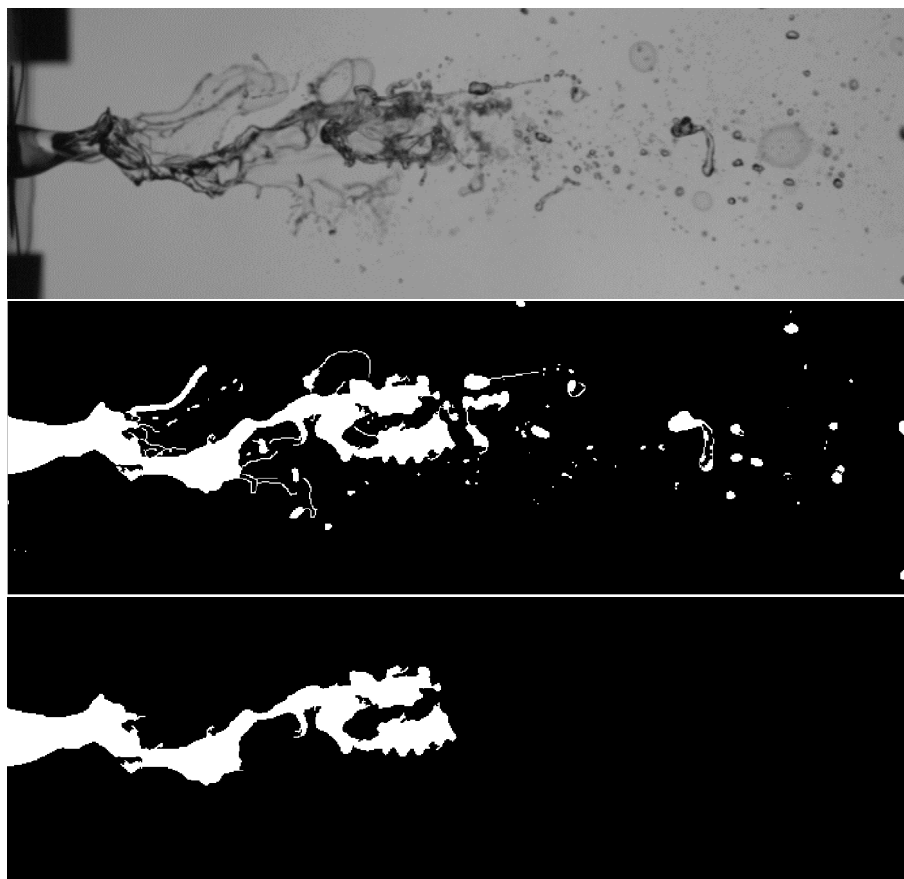


FIGURE II.6 – Image originale du jet (haut), binarisée avant suppression des morceaux liquides détachés (milieu). Image binarisée ne présentant plus que le jet liquide rattaché à l'injecteur (bas).

Figure II.6 (bas). Vient ensuite l'analyse de l'image traitée. Afin de trouver la structure du jet, une recherche de la surface rattachée à l'injecteur est réalisée : la position de la sortie de l'injecteur est renseignée manuellement et permet de trouver le jet liquide. De fait, même si des particules liquides détachées du jet liquide ne sont pas supprimées à cette étape du traitement, elles ne sont pas prises en compte dans l'analyse. Les positions des bords droits et gauches du jet en fonction de la distance axiale à l'injecteur sont obtenues par recherche du changement de valeur de pixel 0/1, en parcourant l'image dans la direction radiale à l'écoulement et à position axiale fixe. Le centre du jet est déduit, calculé comme la mi-distance entre les bords gauche et droit pour chaque position axiale. La Figure II.7 montre le centre et les bords du jet déterminés à partir d'une image traitée, qui vont permettre d'obtenir les caractéristiques du jet suivantes (illustrées en Figure II.4) :

- La longueur intacte du jet ( $L_I$ ) est calculée comme la distance axiale entre la sortie de l'injecteur - le bord gauche de l'image, Figure II.7 - et l'extrémité du jet. La grandeur  $\langle L_I \rangle$  est la moyenne temporelle des longueurs mesurées.

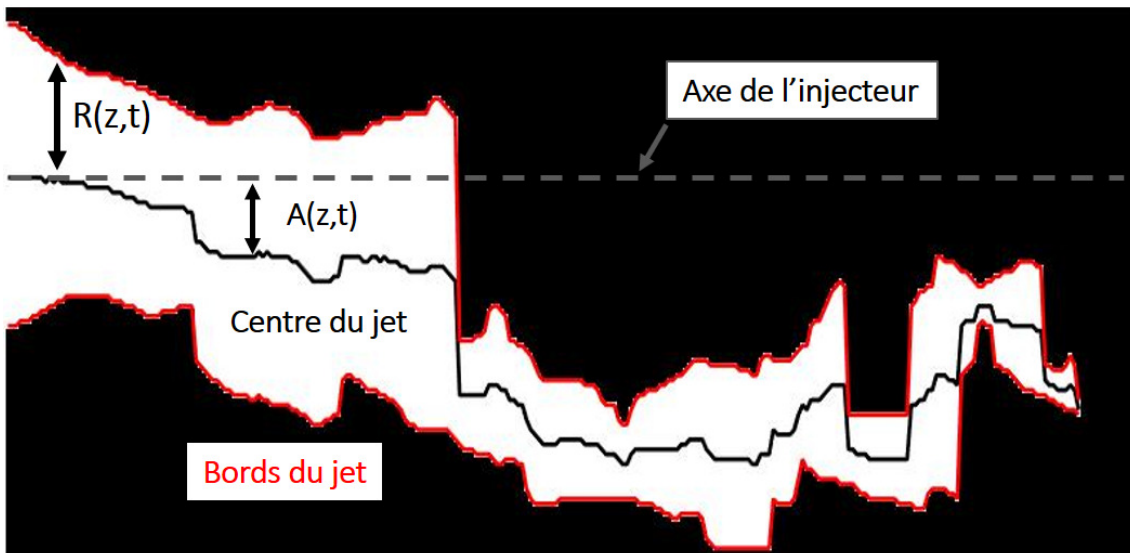


FIGURE II.7 – Bords et centre du jet déduits d'une image traitée et analysée.

- La longueur de dard ( $L_D$ ) est la longueur axiale de la zone toujours occupée par la phase liquide au cours du temps. Obtenue par superposition des jets liquides de toutes les images, les pixels correspondant à la phase liquide pour toutes les images de l'acquisition sont intégrés à cette zone.
- La longueur d'établissement du *flapping* est définie comme la distance à l'injecteur à partir de laquelle le centre du jet subit un déplacement radial  $A(z,t)$  supérieur au rayon de l'injecteur. La grandeur  $L_F$  introduite par la suite est la moyenne temporelle de ces valeurs instantanées.
- L'angle d'ouverture du jet est calculé comme les amplitudes maximales de déplacement radial du jet au niveau de la longueur d'établissement du *flapping*. De façon similaire, l'angle d'ouverture du spray correspond aux amplitudes maximales mais cette fois au niveau de la brisure du jet liquide. La Figure II.8 situe ces deux angles selon l'évolution axiale de l'amplitude radiale du jet.

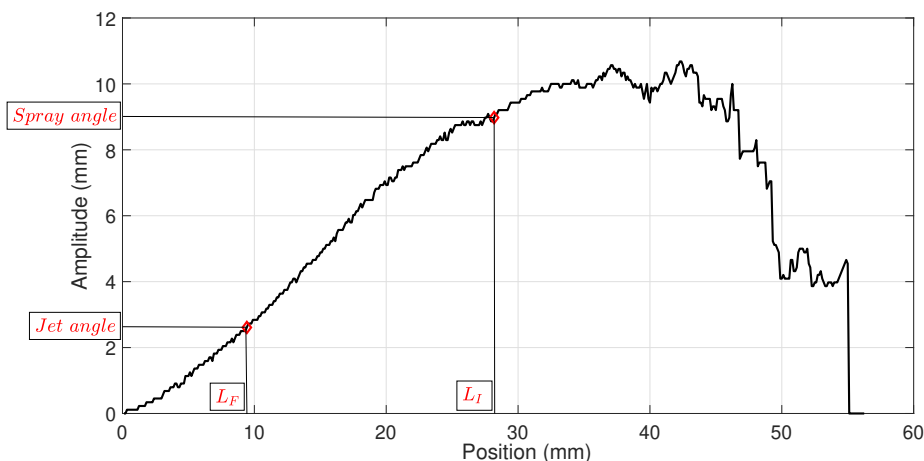


FIGURE II.8 – Localisation axiale des angles de jet et de spray selon l'amplitude de déplacement radial du jet liquide.

Enfin, l'instabilité de cisaillement est déterminée à partir des variations locales du rayon du jet  $R(z,t)$  proches de l'injecteur, tandis que celle du *flapping* dépend des positions du centre du jet  $A(z,t)$  à différentes distances axiales (Figure II.9). Une transformée de Fourier (FFT) par la fonction Matlab *pwelch* permet d'obtenir le spectre fréquentiel de

chaque instabilité et d'en extraire la fréquence dominante. Il est fréquent que le spectre ne présente pas un pic unique mais plusieurs, parfois d'amplitudes proches. Dans ce cas, le pic dont la largeur à mi-hauteur est la plus importante est retenu comme étant la fréquence dominante pour l'instabilité concernée. Une fois la fréquence dominante trouvée, l'incertitude est estimée comme étant la moitié de la largeur du spectre à mi-hauteur.

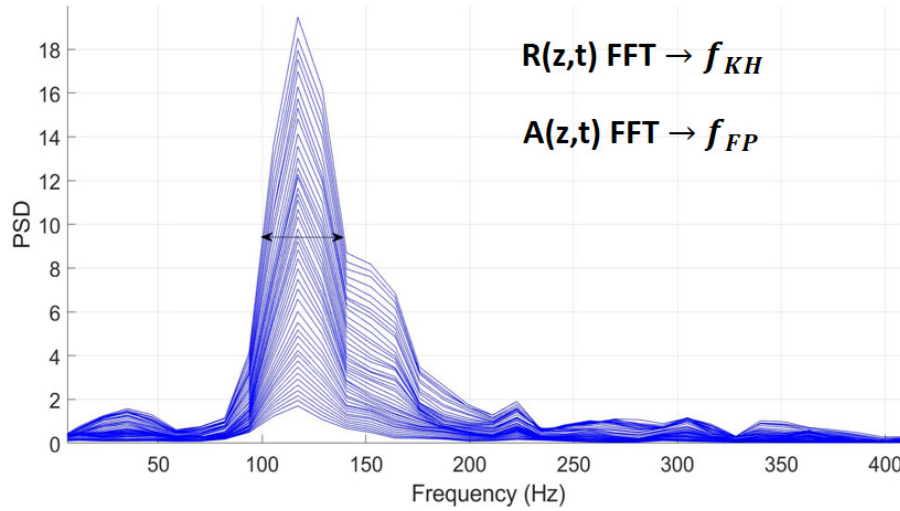


FIGURE II.9 – Méthode de calcul des fréquences dominantes des instabilités de Kelvin-Helmholtz et *flapping* : une transformée de Fourier des variations spatiales et temporelles des bords de jet permet de déterminer la fréquence de KH, celles du centre du jet la fréquence de *flapping*. Les différentes lignes correspondent à différentes réalisations. L'incertitude sur la mesure est déterminée à partir de la largeur du pic dominant à mi-hauteur.

Dans le but de déterminer l'influence de la fréquence d'échantillonnage et du nombre d'images enregistrées (i.e. la durée de l'acquisition) sur les fréquences des instabilités de cisaillement et de *flapping*, une étude de sensibilité des paramètres d'acquisition en imagerie rapide a été réalisée. Le choix de ces paramètres dépend en fait de la fréquence de l'instabilité mesurée : les fréquences de KH et de *flapping* varient de 10 à 100 Hz selon les conditions d'injection. La fréquence d'échantillonnage et le nombre d'images sont choisis de sorte à avoir environ 10 images par cycle.

Pour une vitesse liquide fixée à 0,28 m/s et des vitesses gaz de 24, 58 et 80 m/s, le nombre d'images enregistré a donc été varié entre  $N=3000$  et 6000 et la fréquence d'acquisition  $f_a$  entre 1000 et 6000 images/s selon les régimes d'injection gaz. Pour  $U_G=24$  m/s, les paramètres nécessaires à l'obtention de spectres mono-piqués sont de  $f_a=3000$  images/s et  $N=3000$  images. Pour  $U_G=58$  m/s, la conclusion est moins évidente. La Figure II.10 donne les spectres de FFT pour l'instabilité de *flapping* à différentes valeurs de fréquences d'échantillonnage et nombre d'images. Si l'augmentation de la fréquence de 2000 à 5000 Hz pour 3000 images fait ressortir une seule fréquence dominante, le même changement de fréquence pour 6000 images enregistrées fait ressortir deux pics d'intensités équivalentes. Cependant, la variation des fréquences dominantes obtenues entre les quatre spectres est de 10 Hz avec une largeur de spectre variant de 40 à 100 Hz. La consistance entre ces conditions d'acquisition est donc bonne. Afin de favoriser l'obtention de spectres présentant un seul pic, au moins 3000 images à une fréquence de 5000 im/s seront enregistrées dans l'étude pour des vitesses gaz supérieures à 35 m/s et inférieures à 60 m/s. Lorsque  $U_G=80$  m/s en revanche, une fréquence de 7000 im/s est nécessaire pour obtenir la fréquence dominante des instabilités de Kelvin-Helmholtz et *flapping*. A cette vitesse gaz, l'influence du nombre d'images acquises influe peu sur le spectre. Travaillant sur ces plages de vitesse gaz dans l'ensemble de l'étude et sur des plages de vitesses liquides généralement proches de 0,28 m/s, toutes les mesures sont réalisées avec les paramètres d'acquisition déduits de

cette étude de sensibilité. D'autres facteurs peuvent toutefois rendre délicate l'extraction des fréquences, comme par exemple la présence de vibrations de la structure de l'injecteur à forte vitesse gaz. Ce problème a été rencontré au delà de  $U_G=80$  m/s, et notamment lors de l'utilisation de la turbo-soufflante pour l'injection gaz qui génère des vibrations de la structure de l'injecteur. La reproductibilité des mesures a par ailleurs été étudiée pour des paramètres d'acquisition identiques, les résultats de l'expérience sont présentés dans la section II.3 du chapitre III.

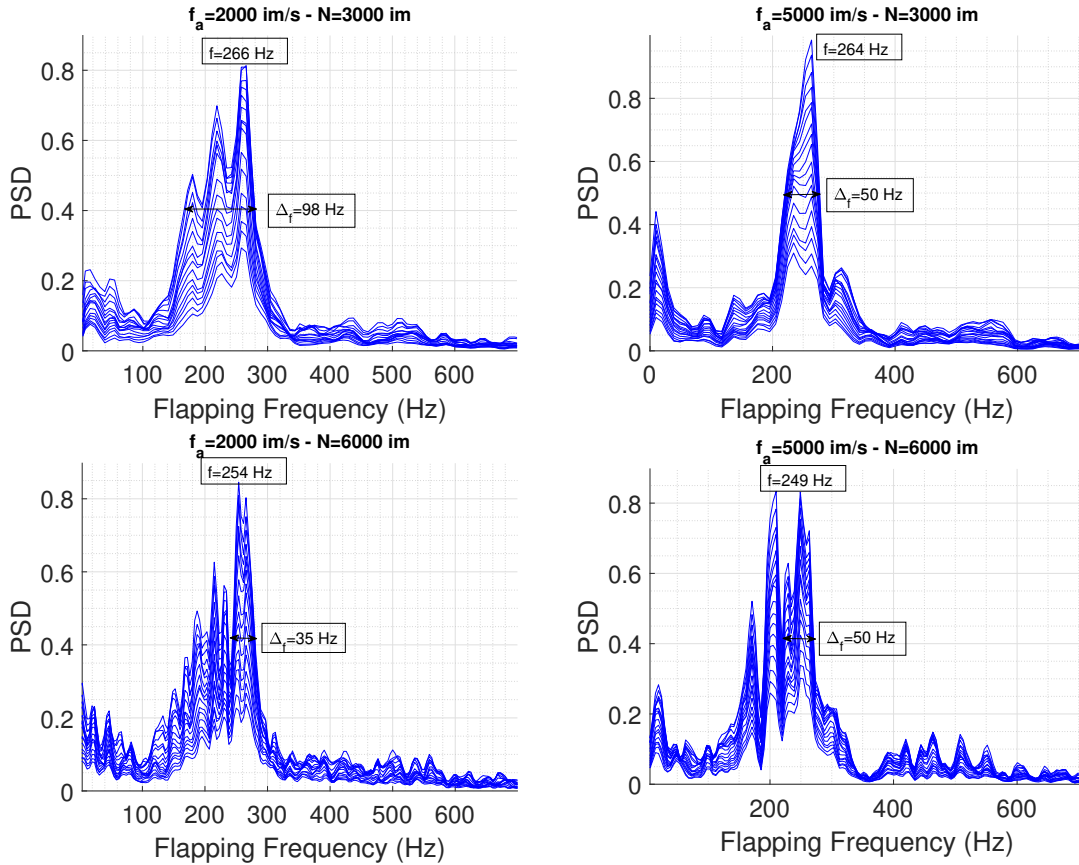


FIGURE II.10 – Spectres fréquentiels de la transformée de Fourier de l'instabilité de *flapping* pour différentes fréquences d'acquisition  $f_a$  et nombres d'images  $N$ . Les barres horizontales caractérisent l'incertitude.

La technique d'ombroscopie se situe parmi de nombreuses autres permettant de caractériser la structure du jet liquide. Elle a pour avantage d'être non-intrusive et de permettre de mesurer de nombreuses caractéristiques du jet. Des biais sur la détection des bords du jet peuvent advenir lorsque des structures liquides détachées sont encore très proches du jet liquide, et dans ce cas "vues" comme rattachées au jet lors du traitement de l'image [15]. Cela arrive notamment lorsque le spray est dense, car l'interstice gazeux entre les masses liquides détachées et le jet liquide intacte est faible.

### II.3 Reproductibilité des grandeurs expérimentales mesurées en imagerie rapide

Cette section introduit les mesures de reproductibilité des grandeurs mesurées par analyse d'image, pour quatre séries de mesures réalisées dans des conditions d'injection identiques. Elle a également pour objectif de rappeler le comportement de ces grandeurs physiques avec la vitesse gaz en eau seule, préalablement à l'ajout de tensioactifs qui viendront complexifier le paysage des paramètres de contrôle. Pour chaque série, 6000 images ont été enregistrées à une fréquence d'échantillonnage  $f_{ech}=3000$  images/s pour  $U_G < 45$  m/s

et 5000 images/s au-delà. La vitesse gaz a été variée de 23 à 57 m/s, la vitesse liquide maintenue constante à 0,28 m/s.

La Figure II.11 présente les fréquences dominantes de KH et *flapping* en fonction de la vitesse gaz. Nous constatons des écarts entre les quatre séries de mesures allant de 2 à 11% pour la fréquence de KH (Figure II.11, gauche) et de 5 à 15% pour les fréquences de *flapping* (Figure II.11, droite). Par ailleurs, ces mesures confirment la dépendance linéaire des fréquences de cisaillement et de *flapping* à la vitesse gaz. Ces conditions d'injection correspondent donc bien à un régime de *flapping* contrôlé par une instabilité de cisaillement asymétrique.

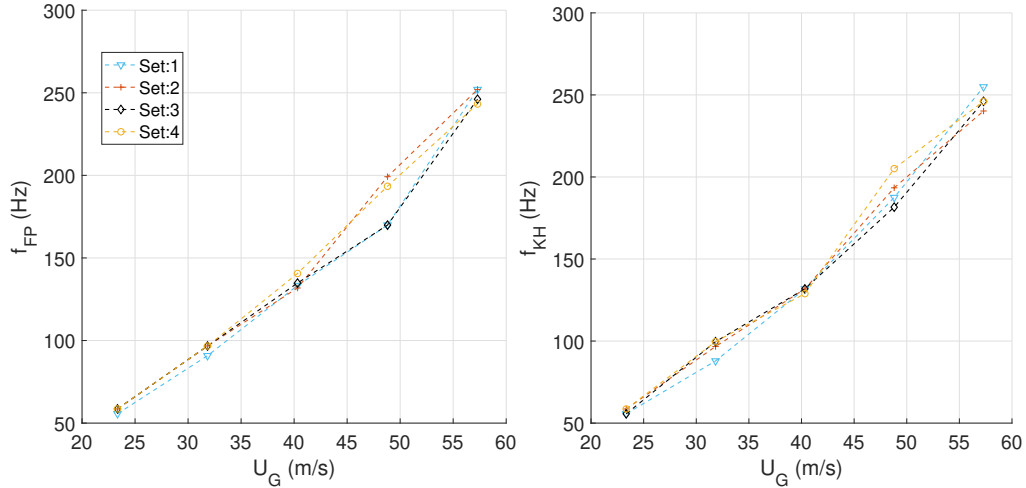


FIGURE II.11 – Reproductibilité pour 4 séries de mesures de la fréquence dominante des instabilités de *flapping* (gauche), et de KH (droite) en fonction de  $U_G$ . La phase liquide injectée est de l'eau pure, la vitesse liquide est fixée à 0,28 m/s.

La Figure II.12 introduit la reproductibilité des mesures de longueur intacte. L'écart relatif entre les mesures varie de 3 à 5% pour la longueur intacte moyenne.

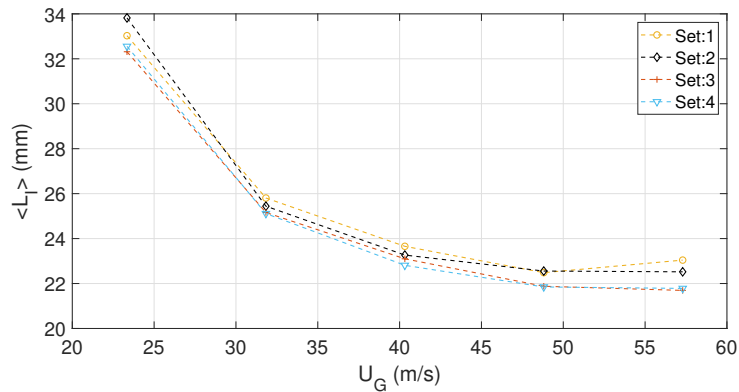


FIGURE II.12 – Reproductibilité pour 4 séries de mesures répétées de la longueur de brisure moyenne en fonction de  $U_G$ . La phase liquide injectée est de l'eau pure,  $U_L=0,28$  m/s.

Les Figures II.13 (A) et (B) montrent la reproductibilité des mesures de la longueur moyenne d'établissement du *flapping* et de la longueur de dard. Les écarts varient de 4 à 11% pour la première, de 4 à 18% pour la seconde. Les Figures II.13 (C) et (D) introduisent les mesures d'angle de jet et de spray. La variation relative de l'angle de jet est comprise entre 2 et 11%, celle de l'angle de spray entre 1 et 20%.

Ces résultats montrent que la reproductibilité des mesures par analyse d'image est de



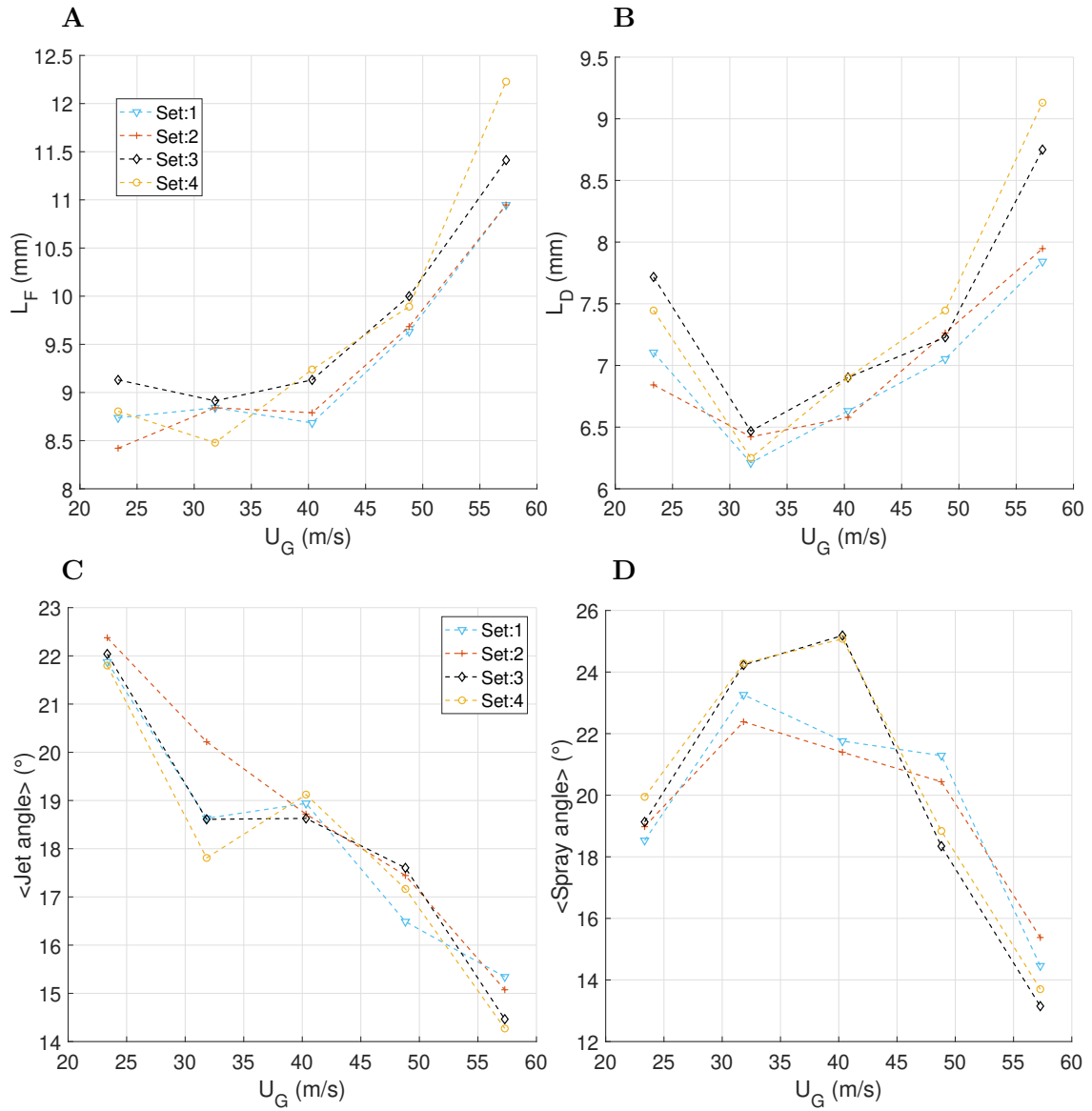


FIGURE II.13 – Reproductibilité pour 4 séries de mesures de la longueur moyenne d'établissement du *flapping* (A), de la longueur intacte (B), de l'angle de jet (C), et de l'angle de spray (D) en fonction de  $U_G$ . Vitesse liquide fixée à  $U_L = 0,28$  m/s.

l'ordre de 10 à 20% d'écart relatif, pour l'ensemble des grandeurs mesurées.

## II.4 Granulométrie

Cette partie fait état des techniques utilisées pour l'analyse granulométrique des gouttes formées. Une première méthode de caractérisation du spray est la diffraction laser, qui permet de mesurer spatialement les tailles de gouttes comprises entre 2 et 2500  $\mu\text{m}$ , dans un volume de mesure perpendiculaire à l'écoulement. La seconde technique de mesure est la sonde optique Doppler, qui permet d'obtenir les temps liquides et vitesses de chaque goutte qui interagit avec la sonde : la mesure est temporelle et ponctuelle. Ces deux techniques sont complémentaires, et possèdent chacune leurs avantages et inconvénients qui seront discutés à la fin de cette partie. Le chapitre suivant sera entièrement dédié à la sonde optique Doppler, du fait du travail conséquent de caractérisation et d'amélioration de l'instrument réalisé. Des comparaisons de mesures de tailles entre les deux techniques seront également proposées.

### II.4.1 Principe de fonctionnement de la diffraction laser

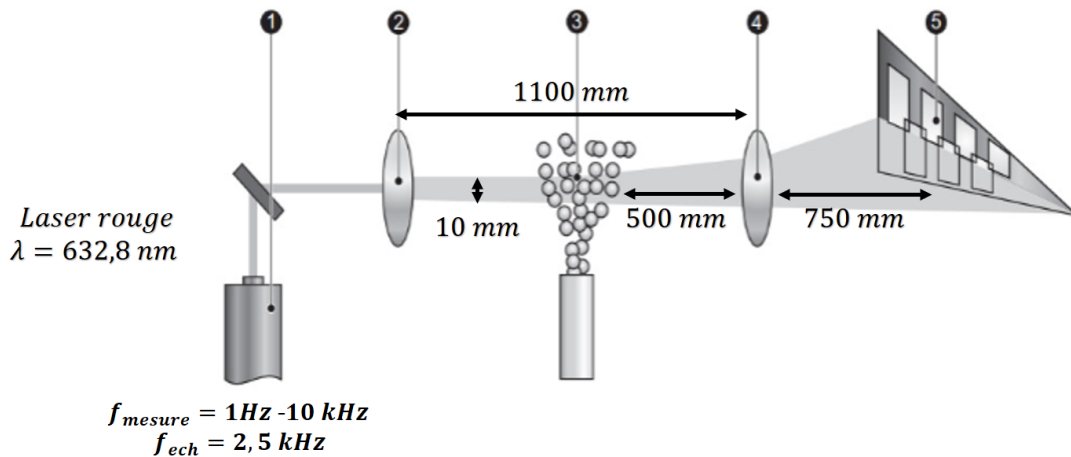


FIGURE II.14 – Principe de la mesure de tailles de gouttes par diffraction laser (source : manuel constructeur).

La Figure II.14 illustre le principe de fonctionnement de la granulométrie par diffraction laser. L'instrument utilisé est le modèle Spraytech, fabriqué par la société Malvern. L'appareil est composé d'un émetteur laser (1) et d'une partie réceptrice (5). Les deux parties sont localisées de part et d'autre du spray étudié (3). L'émetteur produit un faisceau laser Helium-Neon qui est élargi par une lentille de collimation (2) avant de traverser le spray, puis est diffracté en fonction de la population de gouttes présente dans la zone de mesure. Une lentille de Fourier (4) fait converger le signal optique diffracté sur un plan horizontal à la hauteur du récepteur, composé de 30 capteurs d'intensité lumineuse (5). L'intensité collectée par chaque récepteur dépend de la granulométrie du spray : l'angle de diffraction causé par une particule seule est inversement proportionnel à sa taille. L'intensité perçue par les capteurs les plus éloignés de l'axe d'émission du laser sera donc la contribution des faisceaux les plus diffractés, et donc des particules de plus petites tailles. À l'inverse, le signal collecté par les capteurs proches du centre correspondent aux particules de plus grandes tailles. La Figure II.15 fournit l'allure des schémas de diffraction en fonction de la taille de la particule. L'énergie relative comprise entre deux cercles de la figure de diffraction de rayons  $a$  et  $b$  s'exprime, pour  $N$  particules chacune de surface  $S_i$  interceptée par le laser, comme la somme des énergies diffractées par chaque particule seule [18] :

$$E_{a,b} = C \sum_{i=1}^{i=N} N_i S_i [(J_0^2 + J_1^2)_a - (J_0^2 + J_1^2)_b]_i \quad (\text{II.1})$$

C est une constante dépendant des propriétés optiques de l'appareil,  $i=1$  correspond aux plus petites particules et  $i=N$  aux plus grandes. J est la fonction de Bessel :

$$J_n(x) = (x/2)^n \sum_{p=0}^{\infty} \frac{(-1)^p}{2^{2p} p! (n+p)!} x^{2p} \quad (\text{II.2})$$

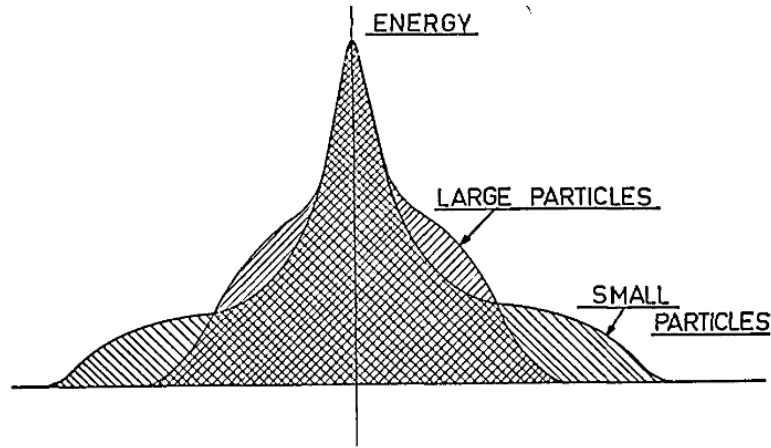


FIGURE II.15 – Schémas de diffractions pour des particules de différentes tailles. Cornillault [18]

Dans le cas de plusieurs particules, la reconstruction des tailles à partir de l'intensité lumineuse mesurée utilise la loi de Mie ou l'approximation de Fraunhofer pour les gouttes de tailles grandes devant la longueur d'onde du laser. Pour une population de gouttes uniquement composée de particules sphériques, l'approximation de Fraunhofer permet de déduire la distribution de tailles  $P(r)$  à partir de la distribution angulaire des intensités  $I(\Theta)$  mesurée par les différents capteurs :

$$I(\Theta) \propto \frac{\lambda^2}{4\pi^2 \Theta^2} \int_{r_{min}}^{r_{max}} \left[ 2J_1\left(\frac{2\pi}{\lambda} r \Theta\right) \right]^2 P(r) r^2 dr \quad (\text{II.3})$$

La distribution de tailles  $P(r)$  est retrouvée à partir de la distribution des intensités  $I(\Theta)$ , en supposant une distribution  $P_1(r)$  donnant une distribution des intensités  $I_1(\Theta)$ . Puis l'écart entre distribution supposée et effective  $|I(\Theta) - I_1(\Theta)|$  est minimisé par itération [72]. Notons que les tailles calculées par cette technique sont exprimées en *diamètres équivalents*, mais les gouttes n'ont pas toujours une forme sphérique. Par ailleurs, la théorie de Lorenz-Mie suppose que chaque faisceau lumineux diffracté reçu par les capteurs résulte de la diffraction causée par une seule goutte. Dans un spray dense, un faisceau diffracté peut l'être de nouveau par une ou plusieurs gouttes. Dans ce cas de diffusion multiple, le fabricant intègre à son logiciel un algorithme correctif.

### Mise en place

L'instrument est placé sur un chariot pouvant être déplacé puis stabilisé. Une crémaillère verticale et motorisée permet d'ajuster la hauteur de mesure, avec une précision de l'ordre du mm. Lors de la mise en place du Spraytech sous l'injecteur, le bon alignement du laser sur le jet est assuré visuellement en ouvrant uniquement la vanne du circuit d'injection liquide (sans gaz), puis en s'assurant que la tâche du laser apparaît centrée sur le jet liquide. L'acquisition est instantanée et non pas continue. Les paramètres d'acquisition sont d'une acquisition par seconde pendant 60 secondes. Une vérification du bon fonctionnement des capteurs est réalisée en début d'expérience par détermination des niveaux de bruit électronique (sans laser) et optique (avec laser). A cette étape, aucun spray

n'est généré et les niveaux de bruits enregistrés sont ensuite soustraits aux mesures lors de l'expérience. Le choix de la distance de mesure axiale sera justifié dans le chapitre V dédié à la granulométrie.

## II.4.2 Principe de fonctionnement de la sonde optique Doppler

Le second instrument pour la granulométrie que nous utiliserons est la sonde optique Doppler. Cette section introduit son principe de fonctionnement, mais le chapitre suivant est consacré à l'étude approfondie de l'instrument.

Les sondes optiques monofibres ont été couramment utilisées pour les mesures de spray, avec plusieurs avantages par rapport aux autres techniques de granulométrie. Elles permettent de mesurer simultanément les cordes et les vitesses de gouttes, et fournissent *in fine* la fraction de phase liquide locale ainsi que le flux de liquide, une quantité difficile à mesurer en utilisant l'imagerie directe ou la PDA (Hong *et al.* [36], Cartellier [12], Marty *et al.* [63], Marty *et al.* [64], Guillard *et al.* [32]). Par ailleurs, la longueur sensible de ces sondes est de l'ordre de 30-50  $\mu\text{m}$ , ce qui est comparable à la taille typique des gouttelettes rencontrées en atomisation. Cependant avec cette technique, la vitesse des gouttes est déduite du temps de démouillage pour lequel une calibration est nécessaire (Hong *et al.* [36]). Un nouveau type de sonde optique monomode et monofibre est fabriqué depuis peu par la société *A2 Photonic Sensors* (Lefebvre *et al.* [49]). Ce capteur combine la technique classique de détection de phase par une pointe conique, avec la collecte d'un signal Doppler produit par une interface gaz-liquide entrante : ce signal Doppler donne accès à la vitesse. Une étude récente a prouvé la fiabilité de cette sonde dans des écoulements hétérogènes à bulles (Lefebvre *et al.* [50]). Lorsqu'elle est immergée dans un spray, cette sonde fournit des informations sur les temps de résidence liquide et sur les vitesses des gouttes, desquels il est possible de déduire la concentration du liquide, le flux de liquide et les distributions de longueurs de cordes. Par rapport aux sondes optiques classiques, ce nouveau capteur ne nécessite aucune calibration. De plus, sa longueur sensible est d'environ 6  $\mu\text{m}$  (Figure ??), ce qui est significativement plus faible que la longueur de latence des sondes classiques (Cartellier & Barrau [11]) de sorte que cette nouvelle technique est à priori bien adaptée pour détecter les gouttes de très faibles tailles.

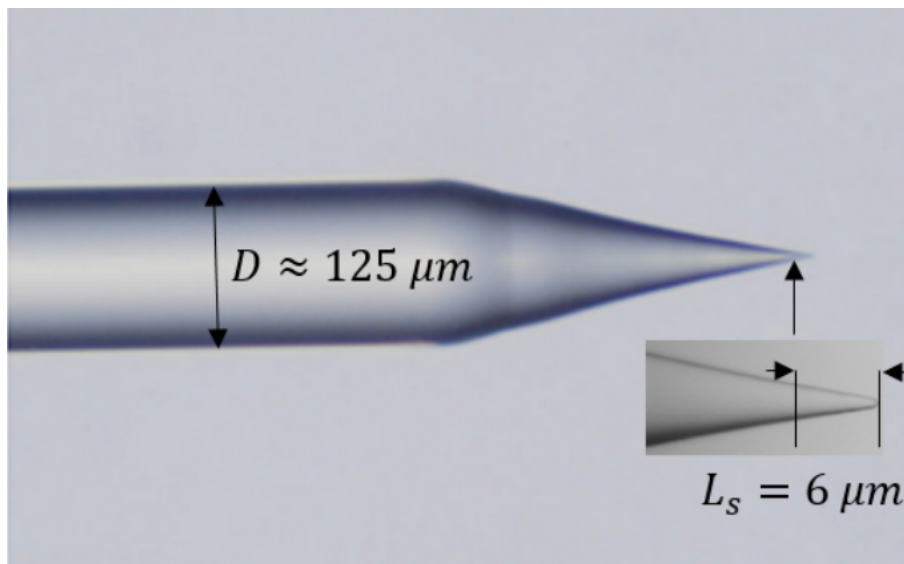


FIGURE II.16 – Vue de la pointe de la sonde optique Doppler sous un microscope.  $L_S$  est la longueur sensible,  $D$  le diamètre externe de la fibre optique.

La sonde optique Doppler est alimentée par une lumière laser monomode de longueur d'onde  $\lambda_0 = 1550 \text{ nm}$ . Une partie de cette lumière est réfléchiée à l'extrémité de la sonde.

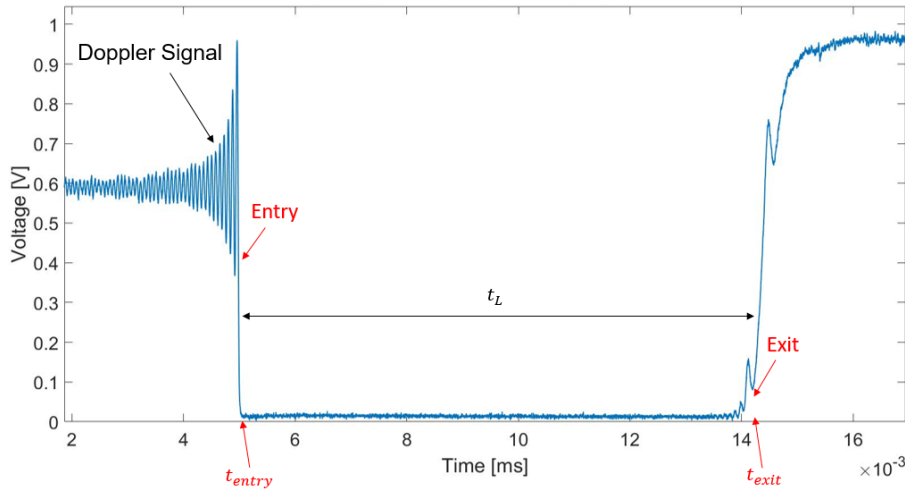


FIGURE II.17 – Signal type d’une goutte en interaction avec la sonde. La partie sensible de la sonde impacte la goutte à  $t_{entry}$  et la quitte à  $t_{exit}$ . Entre ces instants, l’extrémité de la sonde est totalement immergée dans le liquide durant un temps  $t_L$  qui est le temps de résidence de la sonde dans la goutte. Le signal Doppler est perçu avant la transition gaz à liquide.

L’intensité du signal réfléchi dépend de l’indice de réfraction du milieu dans lequel se trouve la sonde (cf Figure II.17). Lorsque la partie sensible de la sonde traverse une goutte, le signal transite d’une amplitude  $V_{G\ local}$ , qui correspond à l’amplitude du signal lorsque la sonde est dans la phase gazeuse, à l’amplitude de la phase liquide pendant un temps  $t_L$ , puis remonte au niveau gaz lorsque la partie sensible quitte la goutte. L’utilisation d’une lumière cohérente ainsi que la forme conique optimisée de la sonde permettent d’obtenir une signature Doppler de l’interface air-eau entrante, comme illustré sur la Figure II.17. Ce signal Doppler provient de la combinaison de la lumière réfléchie à l’extrémité fixe de la fibre (et qui a conservé la même fréquence que celle de la source lumineuse), et de la lumière qui a voyagé dans le milieu externe réfléchi par l’interface en mouvement et ayant subi un décalage de fréquence avant de revenir dans la fibre. Pour une goutte en approche, l’émission Doppler a lieu juste avant la transition gaz-liquide. Un signal Doppler peut également apparaître à l’interface liquide-gaz, mais son amplitude est nettement plus faible et il n’est donc pas exploité pour le calcul de la vitesse. La fréquence Doppler pour une interface gaz-liquide entrante est exprimée comme suit :

$$f_D = 2 \frac{V_z}{\lambda_0/n_{ext}}, \quad (\text{II.4})$$

où  $V_z$  est la vitesse de déplacement de l’interface projetée le long de l’axe de la sonde,  $\lambda_0$  est la longueur d’onde dans le vide de la lumière émise dans la fibre et  $n_{ext}$  l’indice de réfraction de la phase externe, ici la phase gazeuse. La vitesse indiquée dans l’équation II.4 est relative à la vitesse locale de l’interface. Comme les gouttes sont rapides et que le signal Doppler est mesuré avant le perçage, il est supposé que l’interface se déplace à la même vitesse que la goutte. En analysant les conditions nécessaires à la formation d’un signal Doppler, il a été montré que le capteur fournit la vitesse de translation de la goutte projetée le long de l’axe de la fibre avec une incertitude de 10% (Lefebvre *et al.* [50]). La routine de traitement pour la mesure de la vitesse consiste essentiellement à extraire les signaux Doppler présentant suffisamment de franges avec une homogénéité temporelle satisfaisante. L’optimisation de cette routine est présentée dans le chapitre IV. Mentionnons également que la fréquence d’échantillonnage est assez élevée : 250 ou 500 MHz selon les conditions expérimentales.

A partir de la vitesse mesurée et des temps de résidence liquide, les variables locales

suivantes sont calculées :

- La corde de la goutte  $i$  :

$$C(i) = V(i) t_L(i) \quad (\text{II.5})$$

où  $t_L(i)$  est le temps de résidence liquide de la goutte  $i$ , et  $V(i)$  la vitesse de l'interface obtenue après analyse du signal Doppler.

- La fraction liquide :

$$\alpha_L = \sum_i t_L(i)/T_t \quad (\text{II.6})$$

avec  $T_t$  la durée totale de l'acquisition.

- Le flux liquide local :

$$j_L = \sum_i C(i)/T_t \quad (\text{II.7})$$

Pour chaque acquisition, l'évolution des valeurs moyennes des variables locales (temps de résidence du liquide, corde et vitesse) avec le temps d'acquisition est tracée. La durée d'acquisition est fixée de sorte que ces données convergent vers leur valeur moyenne à 5% près, généralement comprise entre 1 et 40 secondes en fonction de la fréquence d'arrivée des gouttes.

### Mise en place

La sonde optique Doppler est placée sous l'injecteur et son axe est parallèle à l'axe de symétrie de l'injecteur. Le choix de la distance axiale  $z$  entre la sortie de l'injecteur et la pointe de la sonde est, comme pour la mise en place du granulomètre à diffraction laser (cf. II.4.1), d'une grande importance. En effet, la longueur  $L_I$  de la structure liquide intacte avant rupture varie avec les conditions d'injection. Afin de caractériser uniquement les gouttelettes formées par atomisation, la sonde doit être située suffisamment loin de l'injecteur pour ne pas détecter le jet liquide encore relié à l'injecteur. Le choix de la distance de mesure axiale sera donc justifié pour chaque condition de mesure dans les chapitres dédiés à la caractérisation du spray.

### II.4.3 Intérêts et limitations des deux techniques

Le Tableau II.2 synthétise les différentes caractéristiques des deux instruments ainsi que leurs avantages et inconvénients respectifs. La diffraction laser fournit directement des distributions de tailles en volume, capture un volume de mesure qui traverse le spray sur un diamètre, et la quantité de données stockées par acquisition est faible. Ces caractéristiques permettent de réaliser des plans d'expérience avec de larges variations des paramètres de contrôle. Enfin, les tailles de gouttes sont mesurées sur tout un diamètre de spray à distance axiale fixe. C'est un avantage si l'on souhaite obtenir une évolution globale des tailles avec la distance à l'injecteur, mais un inconvénient pour caractériser le spray radialement. Pour toutes ces raisons, la diffraction laser sera utilisée pour obtenir l'évolution de la granulométrie avec la distance axiale à l'injecteur, avec ajout de tensioactifs et pour de larges plages de vitesses gaz.

La sonde optique Doppler fournit quant à elle tailles et vitesses de gouttes, ainsi que le flux liquide. La mesure est ponctuelle, et les quantités de données par acquisition sont importantes pour obtenir des données bien convergées. Pour ces raisons, la sonde optique sera utilisée dans un second temps dans le but d'évaluer tailles et vitesses de gouttes en un point fixe du spray, ainsi que de proposer des corrélations tailles-vitesses et mesures de flux.

TABLE II.2 – Caractéristiques du granulomètre à diffraction laser et de la sonde optique Doppler, et comparaison de leurs avantages et inconvénients.

	<b>Diffraction laser</b>	<b>Sonde optique Doppler</b>
Type de mesure	Volumique	Temporelle
Zone de mesure	Sur un diamètre de spray	Ponctuelle
Estimation de la taille	Inversion du schéma de diffraction	Produit du temps liquide et de la vitesse
Données retournées	Tailles en volume	Temps liquides, vitesses, cordes et fraction liquide
Données après post-processing	-	Tailles de gouttes et flux local
Avantages	Pas de calibration	
	Mesure sur un diamètre de spray Pas de post-processing Faibles quantités de données	Mesure en un point du spray → caractérisation radiale du spray possible Mesures de vitesses et flux
Inconvénients	Vitesses non mesurées	Nouvelle technique, validité physique des mesures à caractériser Quantités de données importantes, post-processing

#### II.4.4 Granulométrie par analyse d'image

L'analyse d'image sera considérée comme troisième technique de mesure de tailles de gouttes. De façon similaire à la routine utilisée pour l'analyse de la structure du jet (cf. II.2), les images sont acquises par ombroscopie dans un volume étant le produit de la surface correspondant au champ de la caméra et de la profondeur de champ. Les particules hors de la profondeur de champ sont floues et ne seront pas détectées lors de l'analyse d'image (cf. Figure II.18). La résolution de l'image est de  $39 \mu m$  par pixel, ce qui ne permet pas de capturer des particules de tailles inférieures à cette valeur. Le modèle de caméra utilisé est *Phantom MIRO*, *Vision Research*.

Les contours des particules sont détectées sur l'image brute par utilisation d'un filtre de Canny (avec un gradient seuil de 45% l'intensité maximale de l'image). Les contours incomplets sont comblés par la fonction Matlab *imfill*. Les centres et surfaces de chaque particule sont retournées et le diamètre équivalent de la particule  $i$  est estimé comme :

$$D_i = 2\sqrt{\frac{S_i}{\pi}} \quad (\text{II.8})$$

avec  $S_i$  la surface de la particule  $i$ . La convergence des tailles dans un intervalle inférieur à 5% est vérifiée.

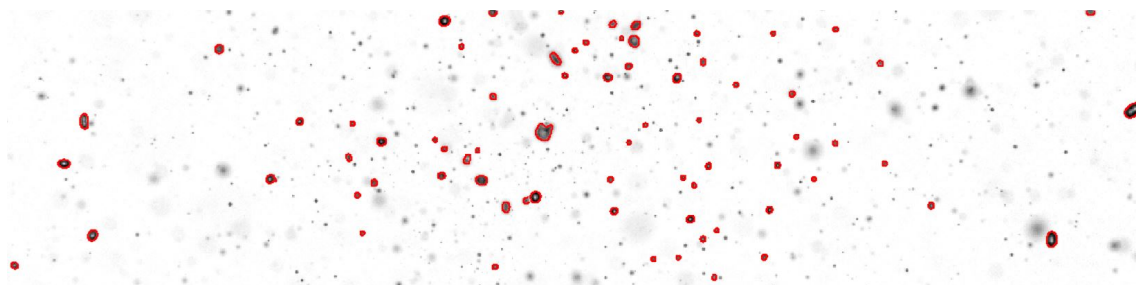


FIGURE II.18 – Exemple de détection de gouttes par analyse d'image.

## Chapitre III

# Influence de tensioactifs sur la structure du jet

Ce chapitre a pour objectif de présenter les travaux réalisés concernant l'influence des tensioactifs sur la structure du jet liquide. La première partie s'attache à caractériser les propriétés des tensioactifs utilisés dans l'étude, en particulier leurs temps typiques d'adsorption dans le but de les comparer au temps de développement des instabilités à l'oeuvre dans l'expérience. Des tentatives de caractérisation des propriétés visco-élastiques des tensioactifs utilisés seront également réalisées. Puis une étude la reproductibilité des caractéristiques du jet liquide mesurées par imagerie rapide sera proposée. La seconde partie présente des images du jet et du spray capturées, et permet de comparer visuellement les différentes mesures réalisées avec tensioactif à celles en eau pure. Nous verrons en particulier que l'effet du C<sub>12</sub>TAB tant sur la structure du jet que sur le spray est très visible à forte concentration. La troisième partie présente les résultats obtenus avec et sans ajout de tensioactifs et met en évidence l'impact significatif du SDS et du C<sub>12</sub>TAB sur l'évolution spatiale de la structure du jet avec les paramètres d'injection, puis au contraire l'absence d'effet du C<sub>16</sub>TAB, confortant l'hypothèse que le transport du tensioactif vers l'interface du jet est limité par cinétique de l'adsorption-desorption. La quatrième partie introduit les mesures des fréquences d'instabilités - KH, *flapping* et brisure du jet liquide - avec et sans tensioactif, l'absence d'effet sur les deux premières démontrant que leur développement est plus rapide que les temps d'adsorption. En revanche, nous observons que le C<sub>12</sub>TAB tend à diminuer la fréquence de brisure du jet liquide.

### III.1 Caractérisation des tensioactifs utilisés

#### III.1.1 Estimation des temps de transport des tensioactifs dans le jet liquide

Les estimations des temps de transport des tensioactifs à l'interface sont présentées dans cette partie afin de mettre en évidence le processus de transport limitant pour chaque molécule et concentration. Ce qui permettra au fur et à mesure de la présentation des résultats expérimentaux, de confronter les temps d'adsorption aux temps de développement des instabilités et de rupture des structures liquides. Les modèles théoriques utilisés ici ont été introduits en section I.2.1. Ces temps pourront être comparés au fur et à mesure de ce chapitre à ceux des instabilités qui conduisent à la rupture du jet liquide dans nos expériences.

Le tableau III.1 regroupe en premier lieu les estimations des temps caractéristiques calculés à partir des données tirées de la littérature pour chaque système. Le temps de diffusion est calculé à partir de l'équation I.34. La longueur de réservoir est également estimée (équation I.35), de l'ordre de 0,1 à 1  $\mu\text{m}$  pour les trois tensioactifs. L'épaisseur du jet liquide dans notre expérience vaut approximativement  $H_L/2=2,5 \text{ mm} \gg h_\Gamma$ . L'on peut donc



à priori considérer le jet liquide comme un réservoir infini de tensioactifs. Les coefficients cinétiques ont été mesurés par Li *et al.* [53] pour deux des tensioactifs que nous avons utilisés -le SDS et le C<sub>12</sub>TAB-, et pour l'ensemble des concentrations utilisées lors de nos mesures. En revanche, ceux du C<sub>16</sub>TAB ne sont à notre connaissance pas disponibles directement dans la littérature. Ces coefficients sont estimés à partir des mesures de la TSD produites par Stubenrauch *et al.* [83], à l'aide d'un tensiomètre à pression de bulle maximale. Nous ajustons ces données avec le modèle d'adsorption limitée par cinétique (équation I.45), utilisé par Li *et al.* [53] pour la famille des alkytriméthylammonium bromides (C<sub>n</sub>TAB). Les résultats de l'estimation sont présentés sur la Figure III.1. Stubenrauch *et al.* [83] ont pour leur part ajusté ces mesures avec un modèle limité par diffusion (équation de Ward&Tordai, I.29). Le modèle limité par cinétique d'adsorption-desorption donne un meilleur ajustement aux temps courts pour les concentrations testées (0,2 et 1 mM). Enfin, le coefficient R est également indiqué, qui est le rapport des temps de diffusion et de transfert cinétique obtenus, grand devant 1 pour un transport limité par diffusion et faible devant 1 pour un transport limité par cinétique. Le processus limitant à l'oeuvre pour chaque système est ainsi déterminé. Les faibles valeurs de R obtenues montrent que le transport est limité par cinétique pour les trois candidats.

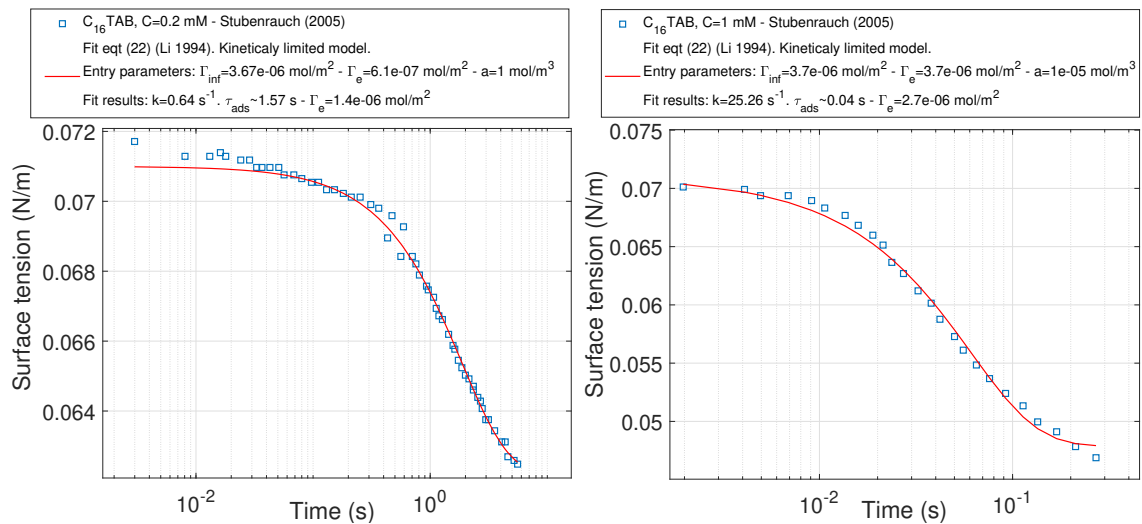


FIGURE III.1 – Estimations des coefficients cinétiques du C<sub>16</sub>TAB à 0.2 et 1 mM (respectivement 20 et 110% CMC), à partir des mesures de la TSD de Stubenrauch *et al.* [83] et ajustées avec l'équation I.45 [53]. Les paramètres d'ajustement proviennent des données de la littérature disponibles dans le tableau I.1

La section suivante s'attache à comprendre les comportements visco-élastiques de l'interface induits par les tensioactifs.

### III.1.2 Tentatives de caractérisation des propriétés visco-élastiques des tensioactifs

Nous présentons dans cette section les tentatives de caractérisation des propriétés visco-élastiques des mélanges utilisés pour nos expériences. Ces mesures ont été réalisées à l'*Institut Lumière Matière* de Lyon à l'aide d'un tensiomètre à pression de bulle. La technique utilisée est celle dite à pression de bulle.

La Figure III.2 présente le dispositif expérimental de mesure de tension de surface dynamique par tensiomètre à pression de bulle (modèle *Tracker<sup>tm</sup>*, *Teclis Scientific*). Une seringue est plongée dans une cuve remplie du mélange à caractériser, et forme une bulle dont le volume peut être varié en fonction du temps par asservissement. Ces variations d'aire sont mesurées par ombroscopie et traitement d'image (effectué par le logiciel constructeur). Les données ainsi obtenues sont la différence de pression de part et d'autre de l'interface de

TABLE III.1 – Table des estimations des temps typiques de transport des tensioactifs à partir des données extraites de la littérature.  $R$  est le rapport des temps typiques de diffusion et de cinétique. Les sources utilisées pour obtenir les grandeurs nécessaires aux calculs des temps sont données pour chaque espèce chimique. Pour les définitions des différentes grandeurs, se référer à la section I.2.1.2 du chapitre I. Nous précisons que le temps caractéristique d'adsorption cinétique est calculé comme  $\tau_k = k^{-1}$  (équation I.39).

	$a=k_2/k_1$ [mol/m <sup>3</sup> ]	$\Gamma_\infty$ [ $\times 10^{-6}$ mol/m <sup>2</sup> ]	$D$ [m <sup>2</sup> /s]	$h_\Gamma$ [m]	$\tau_{\text{diff}}$ [ms]	$k$ [s <sup>-1</sup> ]	$\tau_k$ [ms]	$R$ = $\tau_D/\tau_K$
<b>SDS</b>	[42], [70]		[70]			[53]		
1,6 mM (20% CMC)	1,33	10	$8.10^{-10}$	$1,5.10^{-6}$	3	160	6,25	0,48
3,2 mM (40% CMC)	1,33	10	$7,9.10^{-10}$	$6,5.10^{-7}$	0,53	240	4,17	0,13
4,8 mM (60% CMC)	1,33	10	$7,7.10^{-10}$	$3,5.10^{-7}$	0,16	300	3,33	0,05
6,4 mM (80% CMC)	1,33	10	$7,6.10^{-10}$	$2,2.10^{-7}$	0,07	370	2,7	0,02
8 mM (100% CMC)	1,33	10	$7,5.10^{-10}$		0,03	430	2,3	0,01
<b>C<sub>12</sub>TAB</b>	[54], [70], [8]		[70]			[53]		
3 mM (20% CMC)	1,14	3,7	$9.10^{-10}$	$2,8.10^{-7}$	0,07	100	10	0,07
15 mM (100% CMC)	1,14	3,7	$2,2.10^{-10}$		0,001	900	1,1	0,01
30 mM (200% CMC)	1,14	3,7	$2,3.10^{-10}$		0,0001	1300	0,77	$10^{-4}$
<b>C<sub>16</sub>TAB</b>	[85], [83], [69], [8]		[69]			[83]		
0,18 mM (20% CMC)	0,085	3,67	$3.10^{-10}$	$4,4.10^{-6}$	51,3	0,64	1563	0,03
1 mM (110% CMC)	0,085	3,67	$1.10^{-10}$		3,4	25,3	39,5	0,09
1,84 mM (200% CMC)	0,085	3,67	$1.10^{-10}$		0,48	62	16,1	0,03

la bulle ainsi que sa variation d'aire au cours du temps. La valeur de la tension de surface à chaque instant peut donc être calculée à partir de la loi de Laplace. L'obtention d'une mesure de la tension de surface dynamique est effectuée par l'envoi d'un pulse de pression, i.e. d'une abrupte augmentation de l'aire de la bulle. Dans ce cas, la concentration surfacique en tensioactif est réduite, la valeur de la tension de surface revient à la valeur de l'eau pure et la nouvelle diminution de la tension de surface dépend du temps d'adsorption de l'espèce chimique.

Pour les tensioactifs SDS et C<sub>12</sub>TAB, aucun résultat n'a pu être obtenu bien que plusieurs concentrations ont été testées. La raison étant que leur cinétique d'adsorption est trop rapide devant le temps de variation d'aire de la bulle. En effet dans le cas d'une adsorption limitée par barrière d'énergie (équation I.57) et si la cinétique est rapide devant la période d'oscillation de la bulle ( $St \rightarrow \infty$ ), ou alternativement si l'adsorption est limitée par diffusion (équation I.59) et que la diffusion est rapide devant la période d'oscillation ( $Wo \rightarrow 0$ ), alors  $\Gamma(t)$  reste constant au cours du temps et les modules visco-élastiques ne peuvent être déterminés.

Quelques résultats ont tout de même été obtenus pour le C<sub>16</sub>TAB pour une concentration de 2 CMC, dont la cinétique d'adsorption est relativement plus lente que celle des deux autres molécules. Les mesures pour ce candidat sont présentées en Figure III.3. Elles

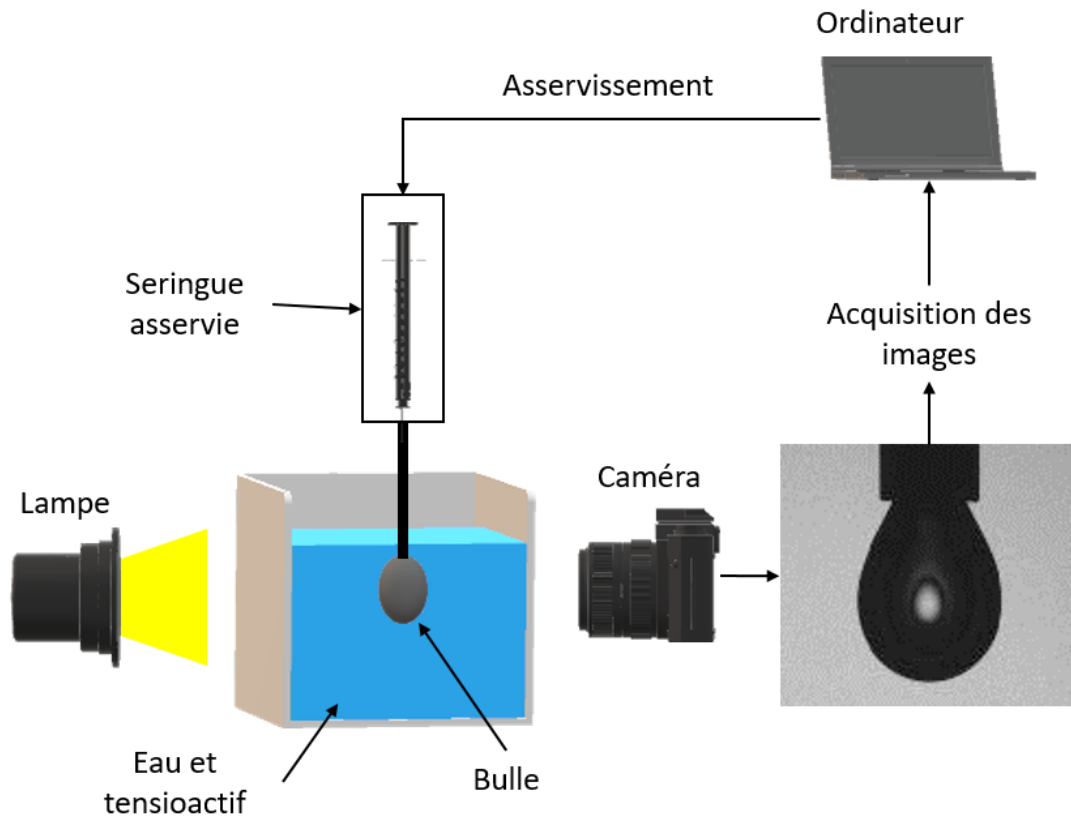


FIGURE III.2 – Principe de fonctionnement du tensiomètre à pression de bulle utilisé pour les mesures de TSD et de visco-élasticité.

ont été réalisées à différentes fréquences d’oscillation du volume de la bulle (0,5-5 Hz), avec une amplitude de  $\pm 1 \mu\text{L}$  autour de la position d’équilibre. Les modules de stockage et de perte sont tracés en fonction de la fréquence, et comparés aux modèles limités par cinétique d’adsorption/barrière d’énergie (équation I.57) et diffusion (équation I.60). Les paramètres utilisés sont  $\tau_{kin} = 10^{-2}$  s pour le premier,  $\tau_{diff} = 10^{-3}$  s pour le second. Ces valeurs sont les ordres de grandeurs des quantités obtenues pour ce système dans le Tableau III.1. Premièrement, les valeurs expérimentales pour le module de perte ( $E''$ ) semblent cohérentes avec le modèle d’adsorption par cinétique d’adsorption/barrière d’énergie. Ce qui est en accord avec les analyses de la section précédente (Tableau III.1). De plus, le module de perte expérimental est plus important que le module de stockage ( $E'$ ) comme décrit pour un système limité par cinétique d’adsorption. En revanche, le comportement constant de  $E'$  avec la fréquence d’excitation n’est décrit par aucun des deux modèles. Ces mesures sont donc peut être bruitées : bien que plus lent que le  $\text{C}_{12}\text{TAB}$  et le SDS, le  $\text{C}_{16}\text{TAB}$  a tout de même une cinétique d’adsorption rapide. Il a été difficile de trouver les bons réglages du tensiomètre afin d’obtenir ces mesures. Enfin, une recherche des paramètres optimaux ( $E_0$ ,  $\tau_{kin}$ ) de l’équation I.57 par la méthode des moindres carrés tel que  $E^*/E_0 \rightarrow 1$  donne les valeurs  $E_0 = 24 \text{ mN/m}$  et  $\tau_{kin} = 25 \text{ ms}$ . Un coefficient élastique de  $45 \text{ mN/m}$  est obtenu par Stubenrauch *et al.* [83] à une concentration de 100% CMC, de  $60 \text{ mN/m}$  par Bergeron [8]. Le temps d’adsorption par cinétique de  $25 \text{ ms}$  est proche de celui trouvé précédemment ( $\tau_{kin} = 16 \text{ ms}$ , cf. Tableau III.1).

Enfin, le Tableau III.2 introduit l’élasticité de Gibbs  $E_0$  (données collectées dans la littérature), et le nombre de Marangoni ( $Ma = E_0/\sigma_\infty$ ) en fonction de la concentration. Ces données proviennent de la littérature et les mesures sont limitées à des concentrations inférieures à la CMC. L’on peut noter que l’élasticité de Gibbs du SDS augmente avec la concentration. Si l’on compare les valeurs du nombre de Marangoni du SDS et du  $\text{C}_{12}\text{TAB}$  aux plus fortes concentrations proches de la CMC,  $5 \text{ mM}$  (63% cmc) et  $15 \text{ mM}$  (100% cmc)

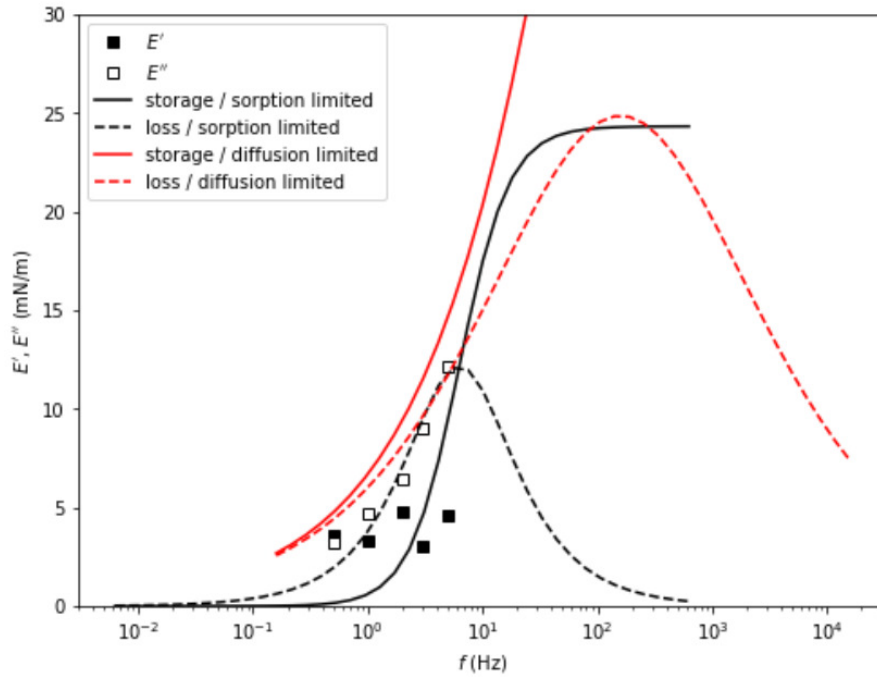


FIGURE III.3 – Mesures des modules de stockage ( $E'$ ) et de perte ( $E''$ ) pour le  $C_{16}TAB$  (2.CMC), et comparaison aux modèles théoriques.

respectivement, celui du SDS est bien plus grand que celui du  $C_{12}TAB$ .

TABLE III.2 – Élasticité de Gibbs en fonction de la concentration pour les tensioactifs testés. Données de la littérature, pour des fréquences d'excitation de 500 à 800  $Hz$ .

	SDS [43]				$C_{12}TAB$ [8]		$C_{16}TAB$	
C (mM)	1	3	5	8	3	15	0,9 [8]	1 [30]
C (% CMC)	13	40	60	100	20	100	100	110
$E_0$ (mN/m)	2	20	62	140	18	45	60	77
Ma	0,1	0,6	1,9	4,4	0,3	1,2	1,6	0,97

### III.2 Visualisations qualitatives des effets des tensioactifs sur le jet liquide et le spray

Cette partie aborde l'effet des tensioactifs sur la structure du jet et le spray qualitativement, à partir d'images du phénomène d'atomisation capturées lors d'injections en eau pure, puis avec tensioactifs à différentes concentrations.

Tout d'abord, la Figure III.4 montre l'évolution du phénomène d'atomisation en fonction de la vitesse gaz pour de l'eau pure. En augmentant la vitesse gaz (de gauche à droite), le régime de brisure du jet liquide transite d'un type Rayleigh-Plateau asymétrique (a) à membrane (b-c), puis fibre (d-h) et enfin superpulsating (i).

Les Figures III.5 et III.6 comparent respectivement le phénomène pour différentes concentrations de SDS (0,2 à 1 fois la CMC) et  $C_{12}TAB$  (0,2 à 2 fois la CMC) à de l'eau pure seule, pour une vitesse liquide fixée à  $U_L=0,28$  m/s, et une vitesse gaz  $U_G=40$  m/s (mode de brisure de type fibre). L'écart temporel entre chaque image est de 0,6 ms. Dans une optique de comparaison, la première image de chaque série a été sélectionnée juste après une brisure du jet liquide avec ce dernier orienté selon l'axe de l'injecteur.

Des visualisations de l'écoulement en fonction de la vitesse gaz avec chaque tensioactif (aux concentrations maximales utilisées) sont disponibles en Annexe A.1 (Figures A.1-A.3).

Les images obtenues lors des mesures avec SDS (Figure III.5) ne montrent pas d'effet apparent du tensioactif sur l'épluchage proche injecteur quelque soit la concentration utilisée. Bien que peu perceptible sur ces images, il semble en revanche que le jet subisse un étirement légèrement plus important avant sa rupture à forte concentration (notamment pour  $C=1.CMC$ ). Et le spray obtenu juste après la brisure du jet liquide paraît s'affiner avec l'augmentation de la concentration en SDS, traduisant une population de gouttes de plus petites tailles. Les effets du  $C_{12}TAB$  sur la structure du jet sont similaires au SDS, mais visiblement importants et ce d'autant plus que la concentration augmente.

La Figure III.7 propose la même comparaison avec un cadrage plus rapproché du jet liquide, afin de mieux visualiser le phénomène d'épluchage. Ici, seule une concentration élevée (2 CMC) a été utilisée, et la vitesse gaz est légèrement plus élevée (48 m/s, mais le régime de brisure reste le même) qu'en Figure III.6. Sur ces images, l'on peut tout d'abord constater une intensification du phénomène de *stripping* à forte concentration : la quantité de liquide arrachée à l'interface du jet est plus importante comparée aux images avec de l'eau pure. De plus, la longueur de brisure semble augmenter.

Puis, la Figure III.8 donne à voir les ligaments formés avec ajout de  $C_{12}TAB$  (2 CMC) avec une meilleure résolution. Pour cette vitesses gaz, les ligaments formés subissent de forts étirements jusqu'à former une poche (encerclée en bleu sur les images). Celle-ci rompt ensuite en fines gouttelettes. Ce phénomène avec dopage a également été observé par Kulkarni *et al.* [45] (discuté en section I.3.4). Avec de l'eau pure, peu de ligaments forment des membranes comme ici, du fait d'une rupture plus précoce des ligaments étirés (comme montré par Marmottant & Villermaux [61], cf. I.1.1.2).

Si l'on s'intéresse maintenant aux gouttes résultantes de l'atomisation, le spray formé à concentration élevée semble plus dispersé spatialement dans le plan image, plus dense et composé de gouttes de plus petites tailles. Comme nous l'avons vu dans la partie I.3.3, Shavit & Chigier [79] ont observé une diminution du SMD avec l'augmentation de la concentration en Tergitol NP-10 (pour une mesure sur l'axe d'un l'injecteur co-axial, des vitesses liquides de 1,28 et 2,89 m/s, une vitesse gaz de 40 m/s et  $\sigma_\infty=30$  mN/m pour la plus forte concentration de tensioactif), résultant notamment de l'apparition d'une seconde population de gouttes de plus petites tailles avec tensioactif.

Enfin, la Figure III.9 introduit les images obtenues avec le  $C_{16}TAB$  à 2.CMC contre de l'eau pure seule, pour  $U_L=0,28$  m/s et  $U_G=40$  m/s. Nous rappelons qu'une seule concentration (élevée) a été testée avec ce tensioactif dans le but de mettre en évidence le transport limitant à l'oeuvre dans l'expérience (cf. section I.5.1). Il est difficile ici de remarquer une différence importante entre les deux conditions d'injection. L'épluchage du jet liquide ne semble pas être différent, ni la longueur de brisure, ni les tailles de gouttes à priori.

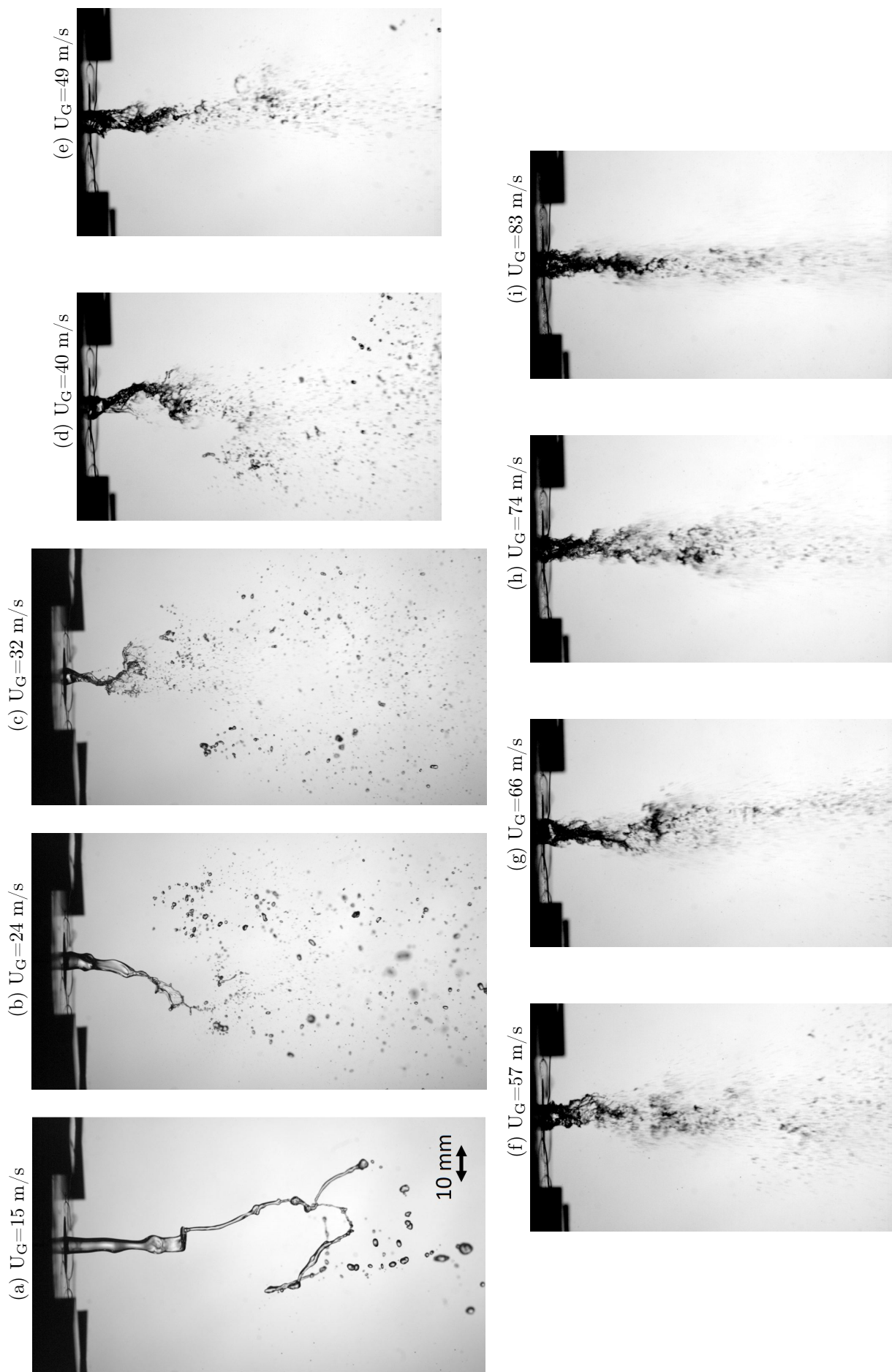
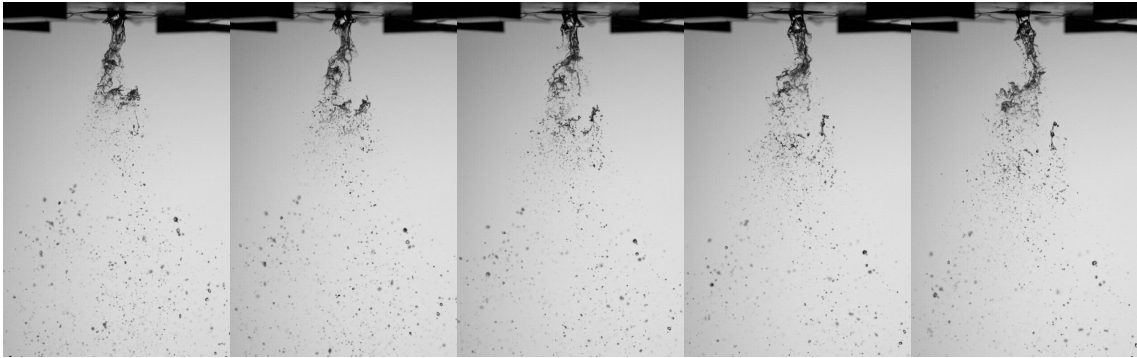


FIGURE III.4 – Visualisation instantanée de la brisure du jet liquide par l'atomiseur co-axial pour de l'eau pure et différentes vitesses gaz. Vitesse liquide fixée à  $U_L=0,28$  m/s.

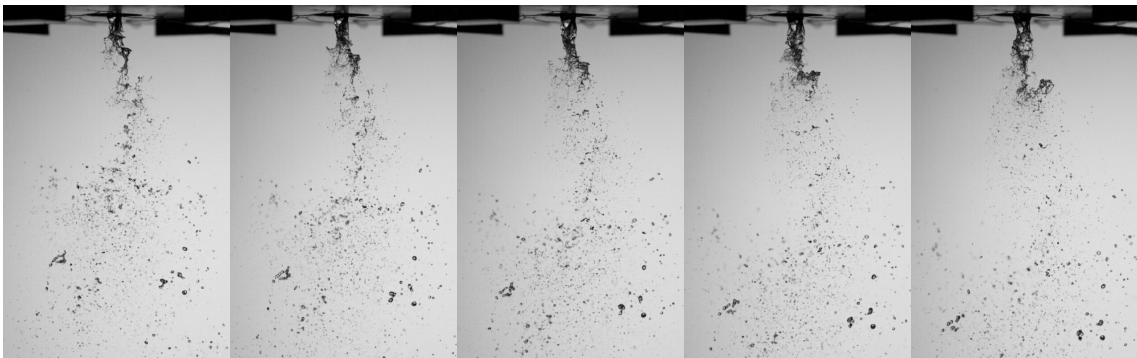
↓ Concentration

→ Temps

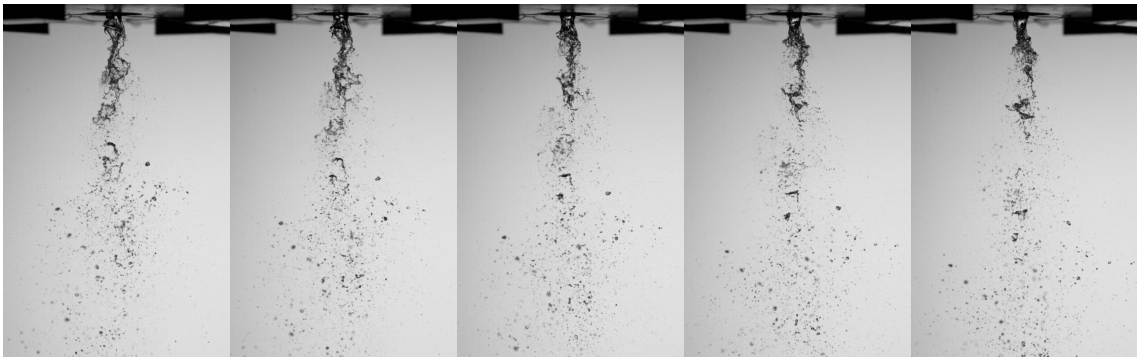
Eau pure



SDS  $C=0,2.CMC$



SDS  $C=0,4.CMC$



SDS  $C=1.CMC$

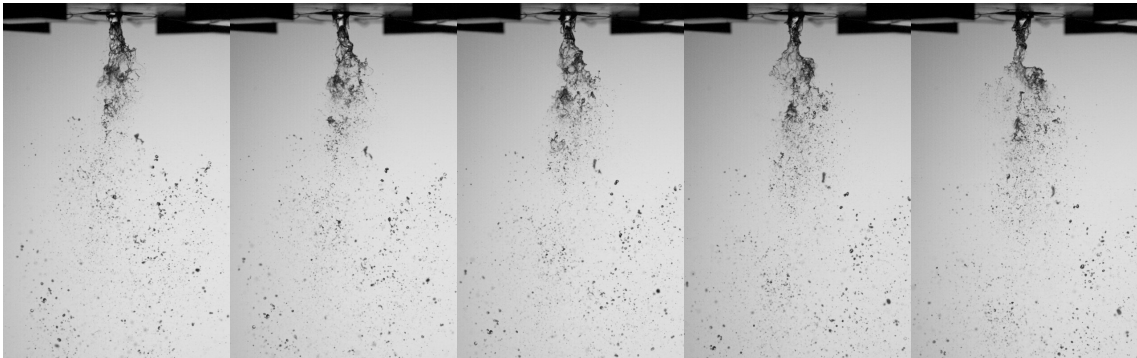
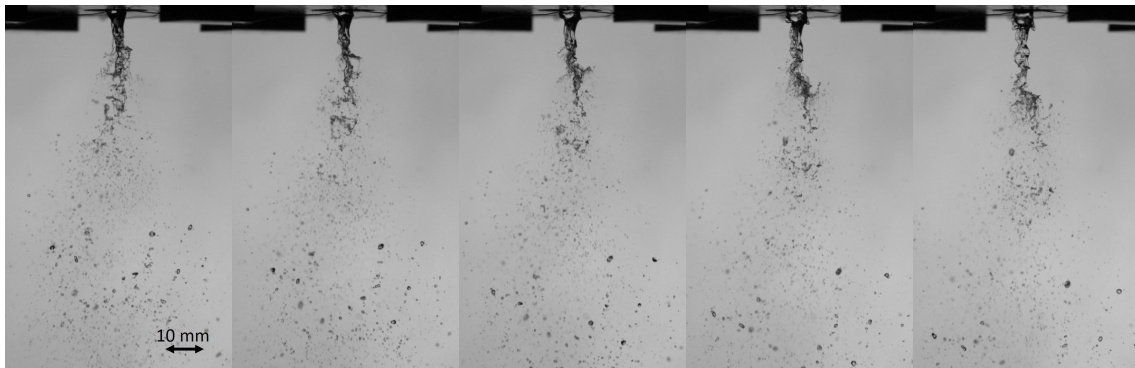


FIGURE III.5 – Évolution du jet liquide au cours du temps (de gauche à droite) pour de l'eau pure, du SDS à  $0,2.CMC$ ,  $0,4.CMC$  et  $1.CMC$  de haut en bas respectivement. L'écart temporel entre chaque image est de  $0,6$  ms.  $U_L=0,28$  m/s,  $U_G=40$  m/s.

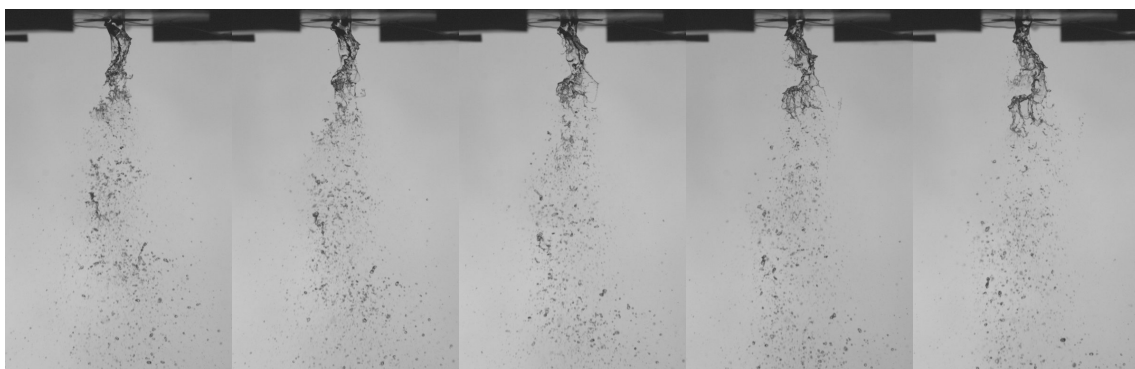
↓ Concentration

→ Temps

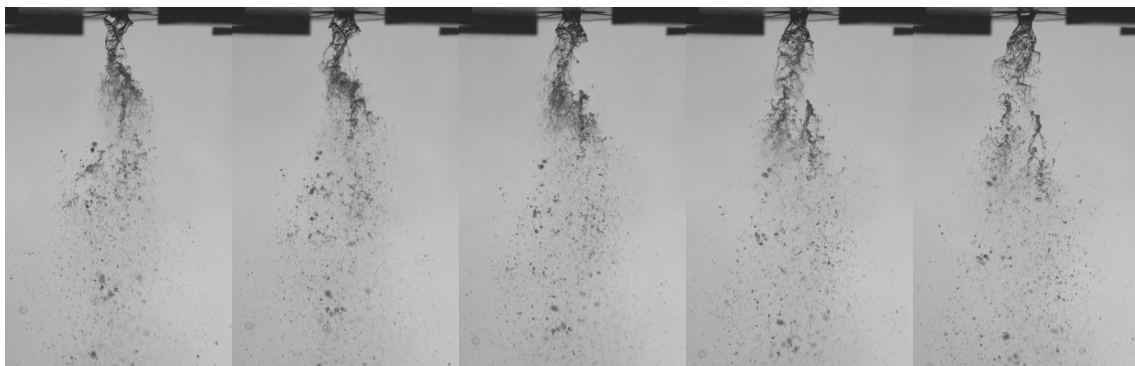
Eau pure



$C_{12}TAB$   $C=0,2.CMC$



$C_{12}TAB$   $C=1.CMC$



$C_{12}TAB$   $C=2.CMC$

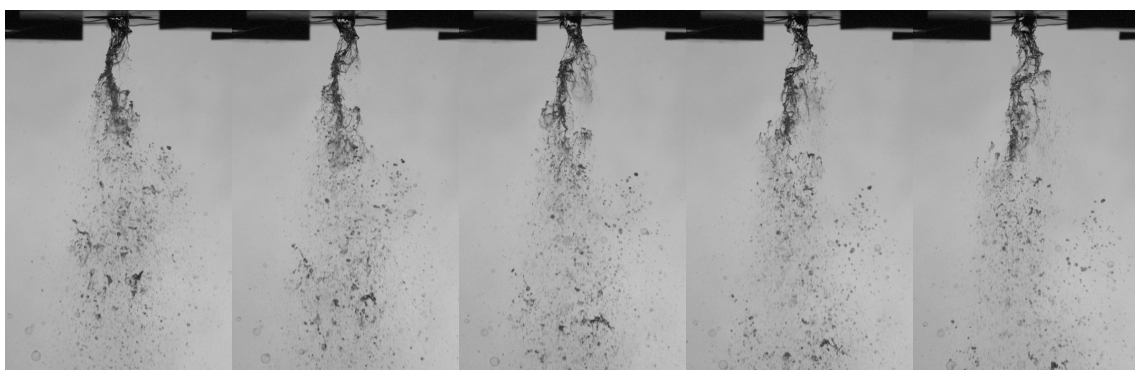


FIGURE III.6 – Évolution du jet liquide au cours du temps (de gauche à droite) pour de l'eau pure, du  $C_{12}TAB$  à 0,2.CMC, 1.CMC et 2.CMC de haut en bas respectivement. L'écart temporel entre chaque image est de 0,6 ms.  $U_L=0,28$  m/s,  $U_G=40$  m/s.



↓ Concentration                      → Temps

Eau pure



$C_{12}TAB$   $C=2.CMC$

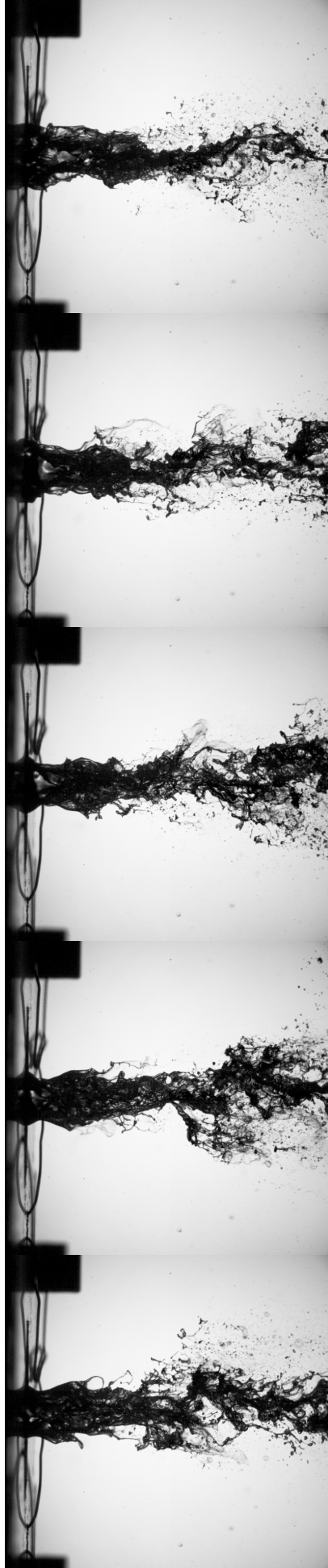


FIGURE III.7 – Évolution du jet liquide au cours du temps (de gauche à droite) pour de l'eau pure (haut) et du  $C_{12}TAB$  à 2.CMC (bas). Acquisition avec un cadrage du jet plus proche que pour les images présentées en Figure III.6. L'écart temporel entre chaque image est de 0,6 ms.  $U_L=0,28$  m/s,  $U_G=48$  m/s.

→ Temps

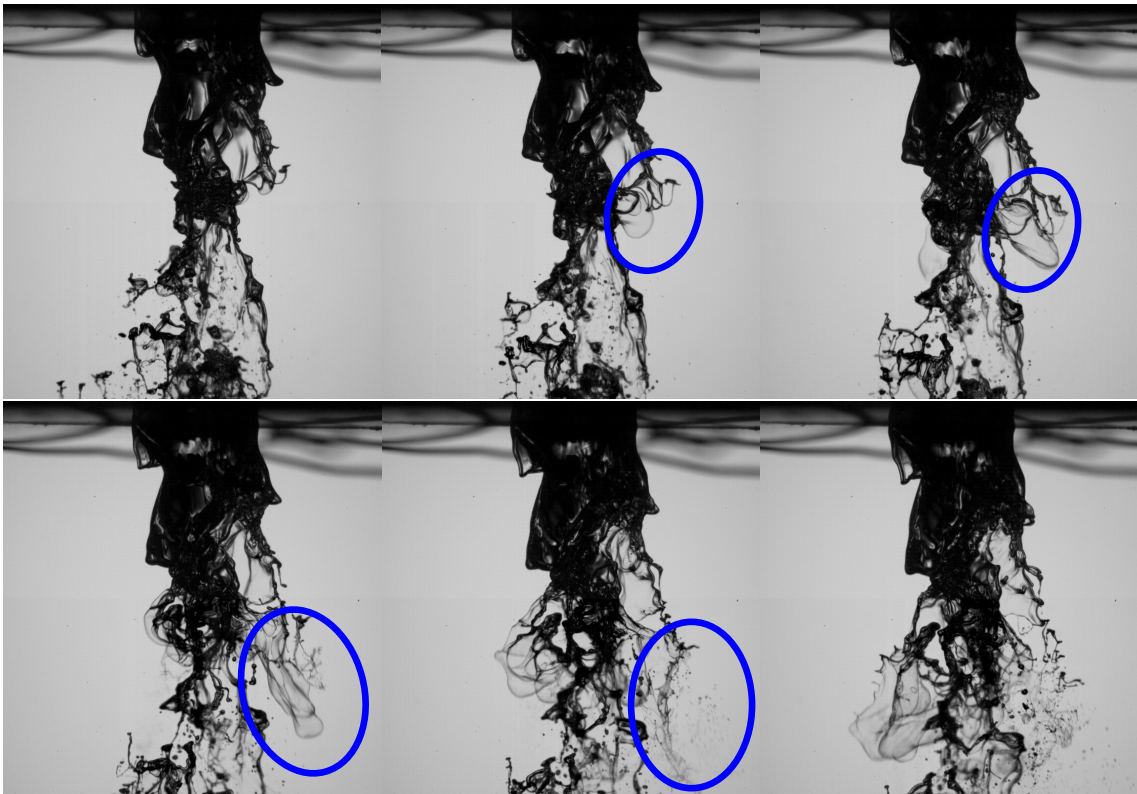
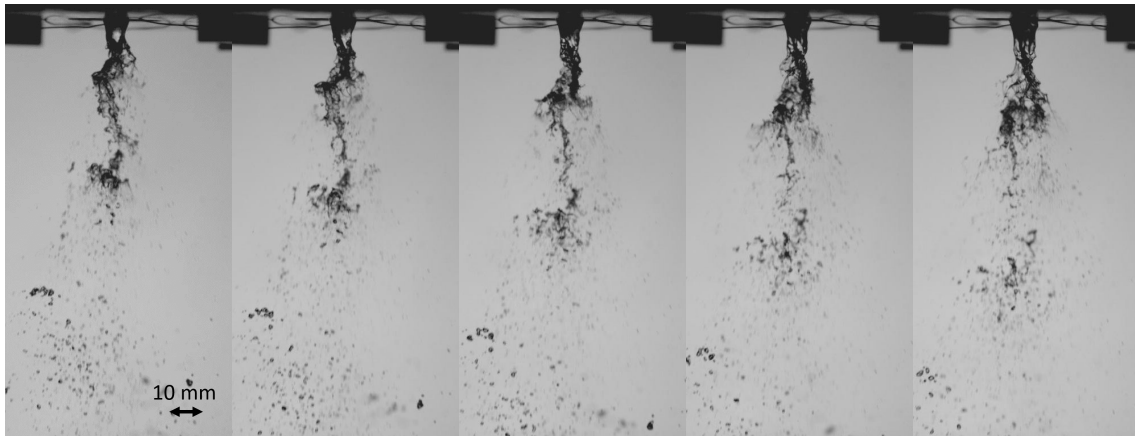


FIGURE III.8 – Exemple de grande élasticité des ligaments avec  $C_{12}TAB$  (2.CMC), jusqu'à leurs étirement en membranes. La transformation d'un ligament en membrane jusqu'à sa rupture en fines gouttelettes est encerclée en bleu. L'écart temporel entre chaque image est de 0,1 ms.  $U_L=0,14$  m/s,  $U_G=48$  m/s.

Eau pure



C<sub>16</sub>TAB C=2.CMC

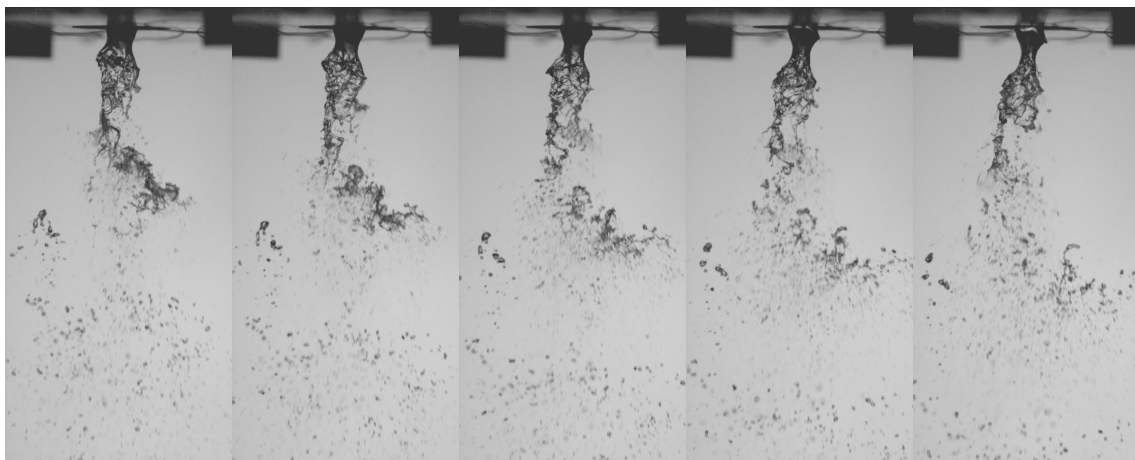


FIGURE III.9 – Évolution du jet liquide au cours du temps (de gauche à droite) pour de l'eau pure (haut) et du C<sub>16</sub>TAB à 2.CMC (bas). L'écart temporel entre chaque image est de 0,6 ms.  $U_L=0,28$  m/s,  $U_G=40$  m/s.

### III.2.0.1 Changements de régime de brisure du jet liquide

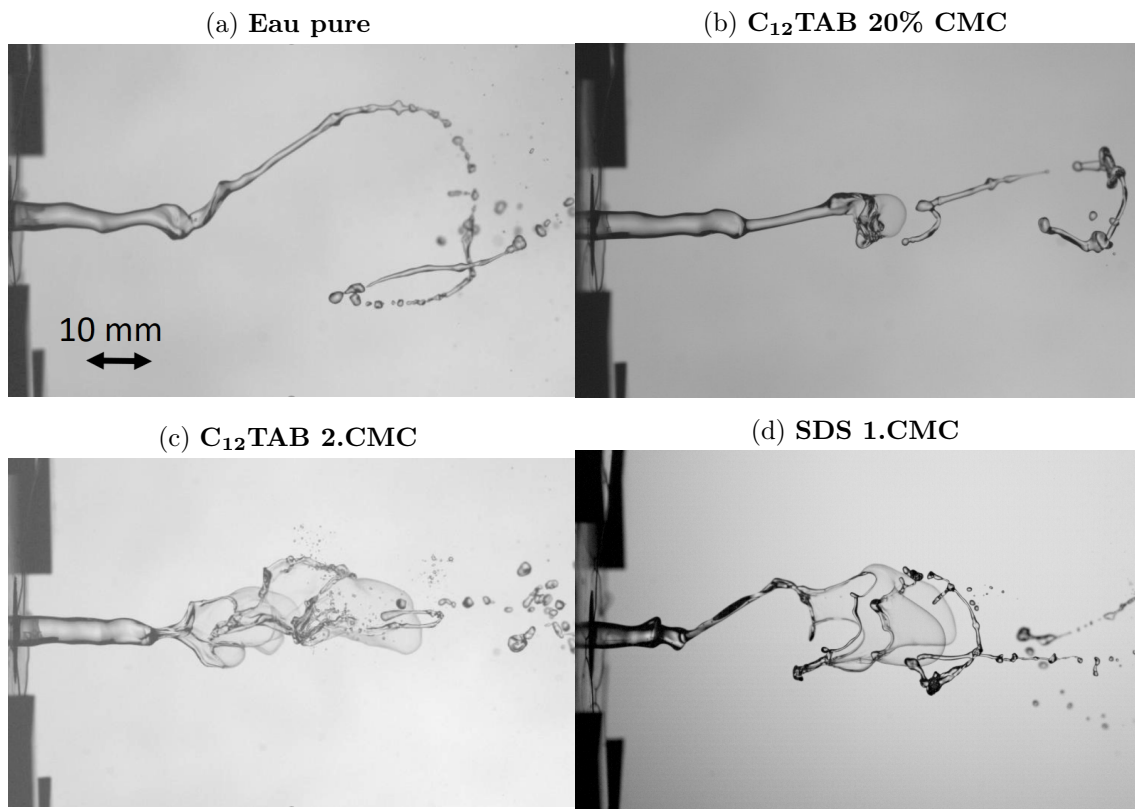


FIGURE III.10 – Brisure du jet liquide type Rayleigh-Plateau en eau pure (a), membrane avec  $C_{12}TAB$ , 20% cmc (b), 2 cmc (c) et SDS 1 cmc (d).  $U_L=0,28$  m/s et  $U_G=15$  m/s. Reynolds liquide :  $Re_L=1400$ . Weber aérodynamique pour chaque cas avec  $\sigma=\sigma_\infty$  :  $We_a(\text{Pure})=21$  (a).  $We_a(C_{12}TAB, 20\% \text{ cmc})= 25$  (b).  $We_a(C_{12}TAB, 2 \text{ cmc})=37$  (c).  $We_a(\text{SDS})=41$  (d).

Un changement du mode de brisure du jet liquide, de type Rayleigh-Plateau dominant à membrane dominant est constaté aux plus faibles vitesses gaz. Un exemple de ces brisures est donné en Figure III.10.

Le mode de brisure du jet liquide a été analysé visuellement pour ces acquisitions. Le Tableau III.3 fournit, pour différents mélanges de tensioactifs et pour de l'eau pure, le pourcentage de brisures du jet liquide qui présentent une formation de membranes, sur un total de 20 brisures de jet observées. Cette évaluation rapide donne un ordre de grandeur de la proportion de brisures de type membrane ou Rayleigh-Plateau, avec et sans tensioactif. Pour une vitesse gaz  $U_G=15$  m/s, seulement 18% des brisures avec eau pure sont de type membrane, 60 à 80% avec tensioactifs. Il semble donc que le dopage induise un changement de régime pour ce couple de vitesses. Pour la vitesse gaz supérieure  $U_G=24$  m/s, le pourcentage de ruptures membranes en eau pure est élevé (80%) et du même ordre de grandeur qu'avec les tensioactifs à fortes concentrations. Seul le  $C_{12}TAB$  à faible concentration (0,2 cmc) présente un ratio significativement plus faible de ce type de brisure.

Il semble par ailleurs que les surfaces de ces membranes soient supérieures avec les tensioactifs SDS et  $C_{12}TAB$  à forte concentration. Nous mesurons donc la surface des membranes pour 10 réalisations par cas à l'aide du logiciel *ImageJ*, par tracé manuel du contour de la poche juste avant sa rupture. Les résultats sont donnés dans le Tableau III.4. Étant donné le caractère fastidieux de ces mesures, elles ne sont réalisées que pour une seule vitesse gaz. Les surfaces des membranes formées avec eau pure,  $C_{12}TAB$  à faible concentration ( $c=2$  cmc) et  $C_{16}TAB$  sont inférieures à  $100 \text{ mm}^2$ . En revanche, la surface

TABLE III.3 – Pourcentages de brisures du jet liquide avec formation de membranes, pour différents mélanges. 20 brisures ont été observées au total. Vitesse liquide  $U_L=0,28$  m/s.

	Eau pure	SDS	C <sub>12</sub> TAB		C <sub>16</sub> TAB
		1 CMC	0,2 CMC	2 CMC	2 CMC
$U_G=15$ m/s	18	60	65	80	80
$U_G=24$ m/s	78	85	55	100	67

moyenne avec SDS ( $c=1$  cmc) est de  $170$   $mm^2$ , et de  $236$   $mm^2$  avec C<sub>12</sub>TAB à forte concentration ( $c=2$  cmc). Ces deux molécules permettent donc d'obtenir des surfaces de membranes plus importantes avant rupture.

TABLE III.4 – Surfaces des membranes menant à la rupture du jet liquide (en  $mm^2$ ), mesurées juste avant la brisure, pour différents fluides. Valeurs moyennes pour 10 réalisations. Vitesses d'injection  $U_G=24$  m/s et  $U_L=0,28$  m/s.

	Eau pure	SDS	C <sub>12</sub> TAB		C <sub>16</sub> TAB
		1 CMC	0,2 CMC	2 CMC	2 CMC
$U_G=24$ m/s	100	170	91	236	81

Nous proposons finalement en Figure III.11 une cartographie des régimes de brisure du jet liquide, similaire à celle proposée par Chigier & Farago [16] (introduite en section I.1.1.5). Le mode de brisure dominant a été déterminé pour chaque condition expérimentale à partir de 20 réalisations de brisure du jet. Comme pour les résultats présentés dans le Tableau III.3, le mode dominant est défini comme celui pour lequel une majorité de brisures de ce type a été observée. Les cartographies obtenues pour l'eau pure d'abord, puis pour chaque tensioactif, sont proposées en fonction des nombres de Weber aérodynamique et Reynolds liquide (Figures III.11a, c, e et g), ainsi qu'en fonction des vitesses d'injection liquide et gaz (Figures III.11b, d, f et h). Le nombre de Weber aérodynamique est basé sur la tension de surface d'équilibre  $\sigma_\infty$ .

Concernant l'eau pure d'abord (Figures III.11a-b), les changements de régime ont lieu à des valeurs de Weber aérodynamique proches de celles obtenues par Chigier & Farago [16] : la frontière Rayleigh-Plateau à membrane est identique, la transition entre les deux modes se produit pour  $We_a \approx 20 - 30$ . Celle de membrane à fibre est légèrement différente : elle est également localisée vers  $We_a \approx 70 - 100$ , mais les points à  $Re_L > 300$  et  $We_a = 45$  indiquent un mode fibre, là où Chigier & Farago [16] observaient un mode membrane.

Si l'on s'intéresse maintenant aux cartographies avec tensioactif en fonction de  $(Re_L, We_a)$ , l'on observe que le mode Rayleigh-Plateau observé en eau pure à faible  $We_a$  devient un mode membrane par augmentation du nombre de Weber dû à la réduction de la tension de surface. Toutes les concentrations impliquent donc un passage dans la zone de brisure membrane aux plus faibles nombres de Weber. En outre, l'ajout de SDS (Figures III.11c-d) déplace la frontière membrane-fibre vers un  $We_a$  légèrement supérieur au cas de l'eau pure. En lisant les cartographies selon les vitesses liquide et gaz, l'on constate que deux modes différents peuvent cohabiter pour un même couple  $(U_L, U_G)$  entre deux concentrations différentes (cf. Figures III.11d et h). C'est le cas proche de la frontière entre régimes membrane et fibre. Il semble donc que la diminution de la tension de surface induite par l'ajout de tensioactif suffise dans ces conditions à basculer d'un régime de brisure à un autre. De plus, la vitesse gaz de transition d'un régime membrane à fibre entre les différents tensioactifs utilisés semble être identique.

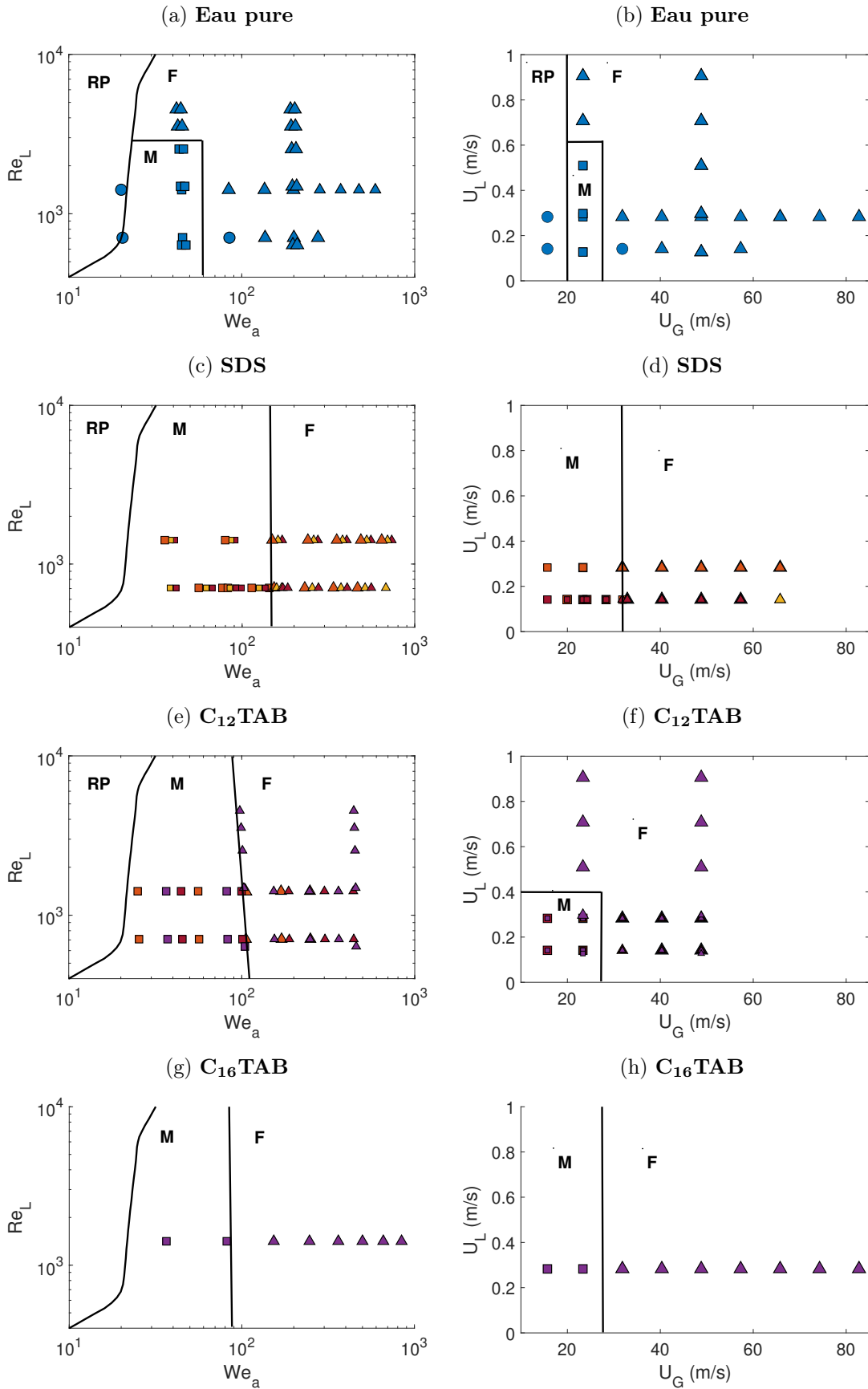


FIGURE III.11 – Cartographie des modes de brisure dominants du jet liquide observés pour l'ensemble des mesures expérimentales réalisées. (a, c, e et g) : selon les nombres de Reynolds liquide ( $Re_L$ ) et Weber aérodynamique ( $We_a$ ). (b, d, f et h) : selon les vitesses gaz ( $U_G$ ) et liquide ( $U_L$ ). Les frontières entre chaque régime sont indiquées par des traits noirs et sont adaptées aux observations. Mode de brisure dominant :  $\circ$  Rayleigh-Plateau non-axisymétrique (RP),  $\square$  Membrane (M),  $\triangle$  Fibre (F). Concentrations : Eau pure (bleu),  $c=20\%$  CMC (orange),  $c=40\%$  CMC (jaune),  $c=100\%$  CMC (bordeaux),  $c=200\%$  CMC (violet).

### Condition critique à la formation d'une membrane à l'extrémité du jet

Nous tentons maintenant de comprendre les paramètres déterminants dans la formation de membranes avec tensioactif. Salkin *et al.* [78] ont étudié la formation de bulles de savon par un jet d'air entraînant un film liquide initialement à l'état d'équilibre. L'expérience consiste en un film de mélange liquide-tensioactif formé par un cadre solide disposé verticalement, de diamètre  $w$  et d'épaisseur  $e$  (Figure III.12). Un jet gaz situé à une distance  $\delta$  du film liquide et orienté perpendiculairement souffle sur le film liquide à une vitesse  $v_g$  en sortie de buse. Le film de mélange eau-tensioactif possède une tension de surface à l'équilibre  $\sigma$ .

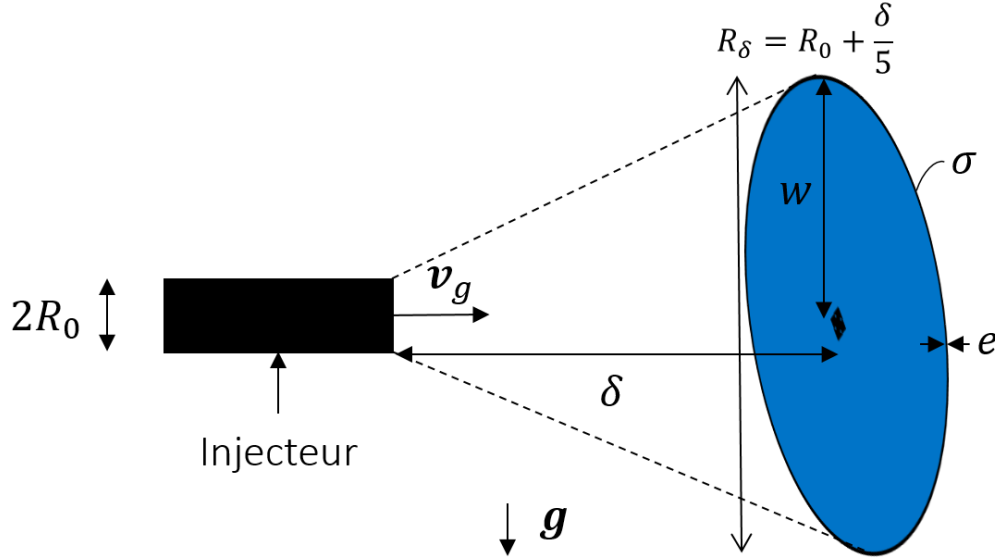


FIGURE III.12 – Schéma du dispositif expérimental permettant de former des bulles de savon, utilisé par Salkin *et al.* [78].

Les auteurs montrent tout d'abord que le film est suffisamment étiré jusqu'à formation d'une bulle lorsque la vitesse d'injection gaz  $v_g$  dépasse une vitesse critique  $v_c$ . En deçà de cette vitesse, le film est simplement étiré et le rayon de courbure de l'interface diminue avec la vitesse gaz. Dans le cas où le jet n'est pas confiné par le film de savon (i.e.  $w/2 < R(\delta)$ ), où  $R(\delta)$  est le rayon du cône gaz à la distance  $\delta$  de l'injecteur et estimé comme  $R(\delta) = R_0 + \delta/5$ , la vitesse critique dépend de la tension de surface de l'interface, de la densité de l'air, du diamètre de l'injecteur et de sa distance à l'interface ainsi que du diamètre du film :

$$v_c \approx \sqrt{\frac{8\sigma}{\rho_G R_0}} \sqrt{\frac{2R_0}{w}} \left(1 + \frac{\delta}{5R_0}\right) \quad (\text{III.1})$$

Dans le cas de l'atomisation assistée, l'on peut modéliser la déformation du jet liquide en membrane en utilisant le modèle de Salkin *et al.* [78]. Au vu des images obtenues avec tensioactif (Figure III.10), l'on observe que la membrane se forme généralement lorsque l'amplitude de *flapping* est maximale. C'est l'extrémité du jet quasi-perpendiculaire à l'écoulement gaz qui va former une bulle (cf. images en Figures III.10a-d). Le paramètre  $w$  dans l'équation III.1 peut donc être estimé comme l'amplitude radiale maximale du jet liquide à sa longueur de brisure moyenne : de l'ordre de 10 mm dans le cas de l'eau pure, et aux vitesses  $U_L = 0,28$  m/s et  $U_G = 15$  m/s. La différence principale est que  $w$  n'est pas constant et dépend du temps, puisque l'interface étirée par l'entraînement gaz est une surface libre (elle n'est pas maintenue par une structure solide). En supposant  $R_0 \approx (2.H_G + H_L)/2 = 7,5$  mm, et  $\delta \approx \langle L_B \rangle$  (la longueur de brisure du jet), l'on a alors  $R(\delta) = R_0 + \delta/5 \approx 16,5 > w/2 \approx 5$ . L'on se situe donc bien dans le cas où l'écoulement gaz n'est pas confiné par le film liquide.

Deux hypothèses supplémentaires sont considérées :

- la vitesse gaz à l'extrémité du jet est celle en sortie d'injecteur, i.e.  $U_G(z=\langle L_B \rangle) \approx U_G(z=0)$ .
- Avec tensioactif, la tension de surface à l'interface du jet est proche de celle d'équilibre.

Le Tableau III.5 donne les estimations de la vitesse critique  $v_c$  nécessaire à la formation d'une poche, obtenues à partir de l'équation III.1, pour de l'eau pure et du C<sub>12</sub>TAB ( $c=2$  cmc). L'on obtient une vitesse critique plus faible avec C<sub>12</sub>TAB (15 m/s contre 20 m/s pour l'eau pure), qui correspond à la vitesse gaz pour laquelle le changement de régime de brisure a été observé avec tensioactif. Ainsi la vitesse critique nécessaire à la formation d'une poche est atteinte avec dopage dans ces conditions d'injection, contrairement au cas de l'eau pure, ce qui conforte les observations. Par ailleurs, la rupture de ces membranes peut ensuite impacter la taille des gouttes dans le spray (cf. section I.3.4).

TABLE III.5 – Vitesse nécessaire ( $v_c$ ) à la formation d'une membrane à l'extrémité du jet liquide, avec et sans tensioactif. D'après le modèle de Salkin *et al.* [78].

	Eau pure $\sigma_\infty=71$ mN/m	C <sub>12</sub> TAB ( $c=2$ cmc) $\sigma_\infty=38$ mN/m
Régime dominant observé ( $U_L=0,28$ m/s, $U_G=15$ m/s)	Rayleigh-Plateau	Membrane
$v_c$ (m/s)	20,2	14,8

### III.3 Analyse quantitative des effets des tensioactifs sur la structure du jet

Cette partie introduit les résultats des mesures réalisées par imagerie rapide, dans le but de caractériser l'évolution de la structure du jet liquide au cours du temps pour les différentes solutions de tensioactifs injectées. Nous nous intéressons dans un premier temps à l'impact des agents de surface sur les longueurs intactes et de brisure du jet liquide. Il sera montré ensuite que ce tensioactif réduit l'angle moyen du jet liquide pour des concentrations supérieures ou égales à la CMC. Finalement, l'influence des tensioactifs sur les longueurs de dard et d'établissement du *flapping* sera étudiée.

#### III.3.1 Longueur intacte et longueur de brisure

L'image III.13 illustre la longueur intacte du jet liquide (cf. II.2), ou longueur de jet, qui correspond à la distance verticale entre l'extrémité du jet et l'injecteur à l'instant de la mesure.

La longueur de brisure diffère de la longueur intacte : cette longueur correspond à l'extension maximale du jet juste avant sa rupture. Nous montrons en Figure III.14 un exemple de mesure de la longueur intacte en fonction du temps, ainsi que les réalisations de brisure du jet, qui ont généralement lieu lorsque le jet atteint une longueur maximale. Ces dernières sont obtenues par recherche des maximums locaux dans le signal  $L_I = f(t)$ , en précisant un temps typique entre deux brisures successives qui est obtenu à partir des images brutes du jet et pour vingt réalisations de brisure. Nous présentons dans un premier temps les mesures de la longueur intacte, la plus couramment étudiée dans la littérature, puis les mesures de longueur de brisure.

##### III.3.1.1 Distributions de la longueur intacte

Les distributions des longueurs intactes sont décrites par les Fonctions de Densité de Probabilité (PDF, *Probability Density Function*), normalisées par la moyenne. L'objectif



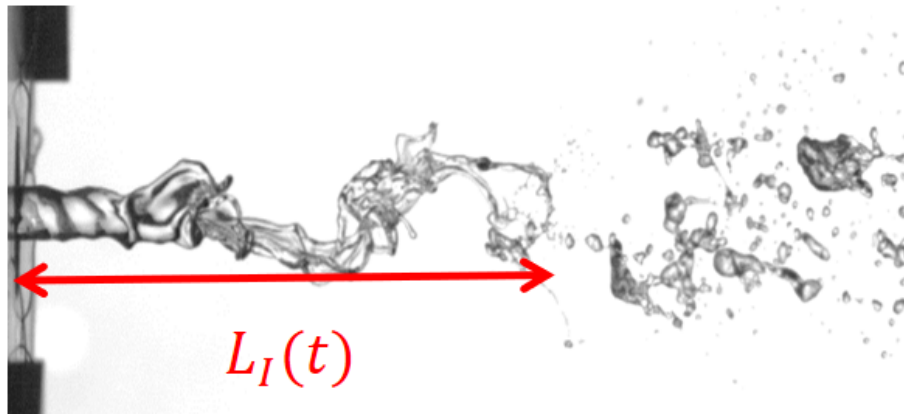


FIGURE III.13 – Illustration de la longueur intacte, qui correspond à la distance axiale entre l'extrémité du jet liquide brisé et l'injecteur liquide à chaque instant .

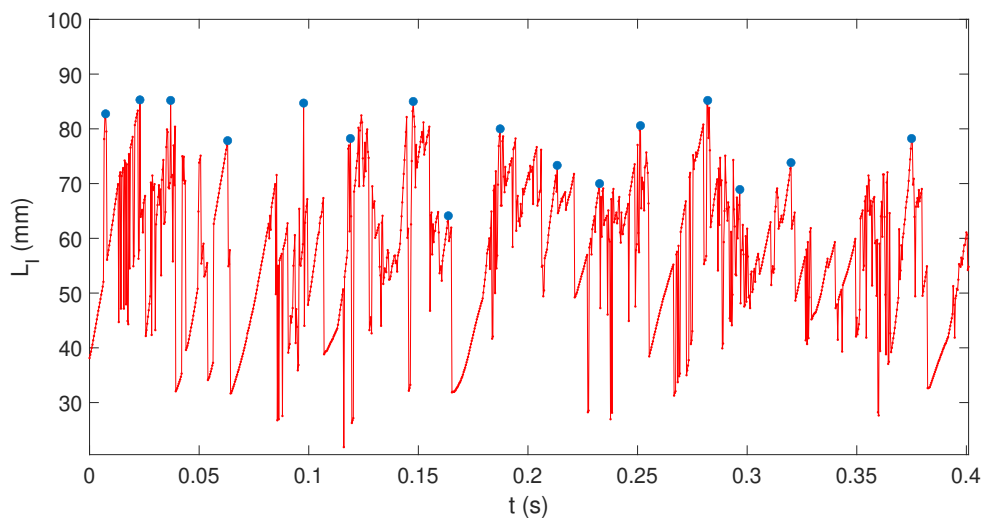


FIGURE III.14 – Longueur intacte en fonction du temps (rouge), et longueurs de brisure (bleu).

ici est de voir si les tensioactifs ont un effet sur l'allure des distributions et les extremums mesurés. Dans le but également de comparer les effets des trois tensioactifs, nous présentons ci-après des conditions hydrodynamiques proches entre les différentes séries. Pour le SDS (Figure III.15), il apparaît que les distributions de  $L_I / \langle L_I \rangle$  sont confondues autour de la moyenne pour les différentes concentrations. Ce n'est pas le cas pour la vitesse gaz  $U_G = 15$  m/s à laquelle un changement du mode de brisure du jet a été observé (cf. III.2.0.1). Ici, une asymétrie apparaît vers les longueurs de jet supérieures à la moyenne, à l'inverse de la distribution de l'eau pure.

Les mêmes tendances qu'avec le SDS sont observées pour le  $C_{12}TAB$  (Figure III.16).

Enfin, les distributions de la longueur intacte pour le  $C_{16}TAB$  ( $C=200\%$  CMC, Figure III.17) présentent un élargissement de la PDF par rapport à celle de l'eau pure à faible vitesse gaz  $U_G = 15,7$  m/s, mais une plus faible probabilité d'occurrence autour de la moyenne ( $0,8-1,3 \langle L_I \rangle$ ). Les différences de distributions sont très faibles à vitesse gaz modérée  $U_G = 40,3$  m/s.

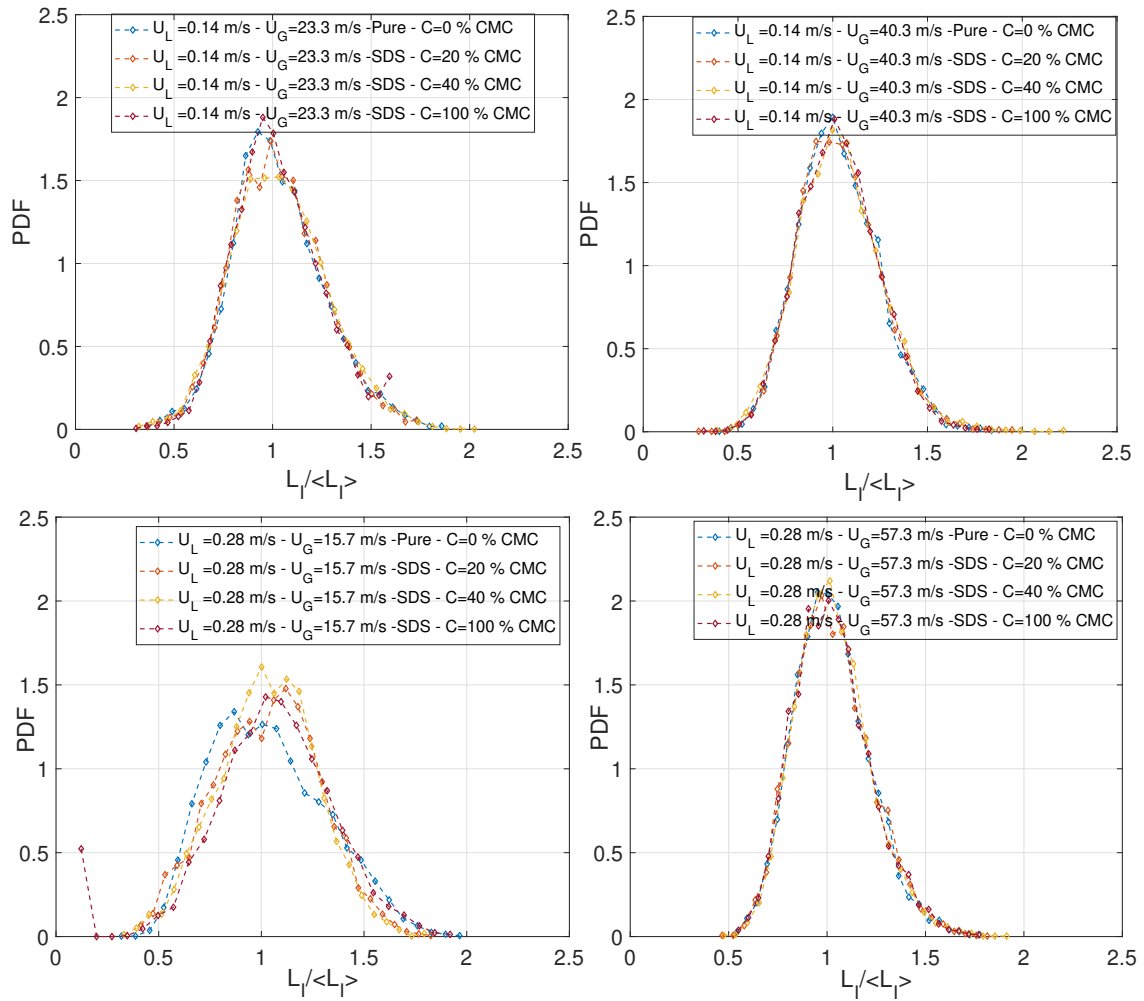


FIGURE III.15 – Distributions de la longueur de jet normalisée par sa valeur moyenne pour les mesures avec SDS, à différents couples de vitesses liquide et gaz.

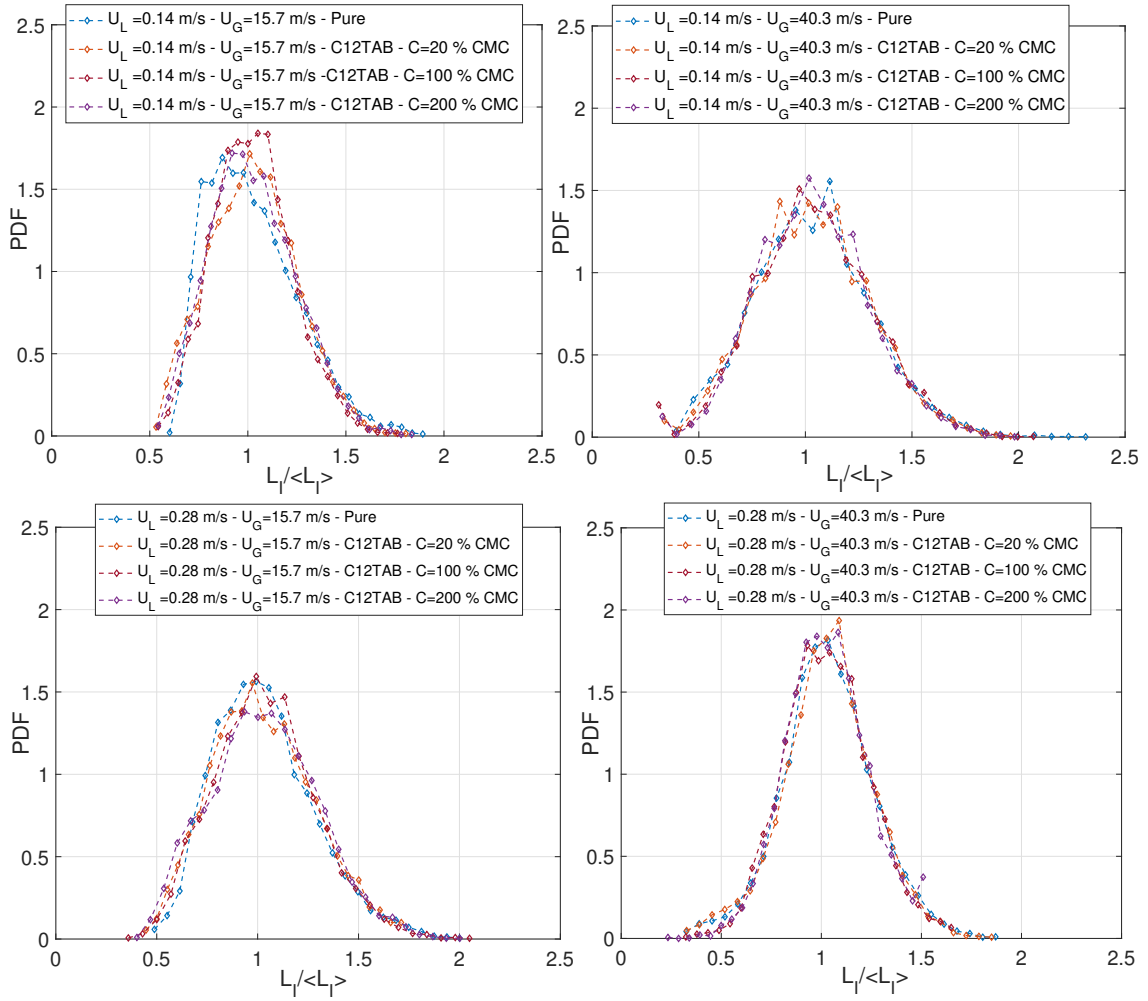


FIGURE III.16 – Distributions de la longueur de jet normalisée par sa valeur moyenne pour les mesures avec C<sub>12</sub>TAB, à différents couples de vitesses liquide et gaz.

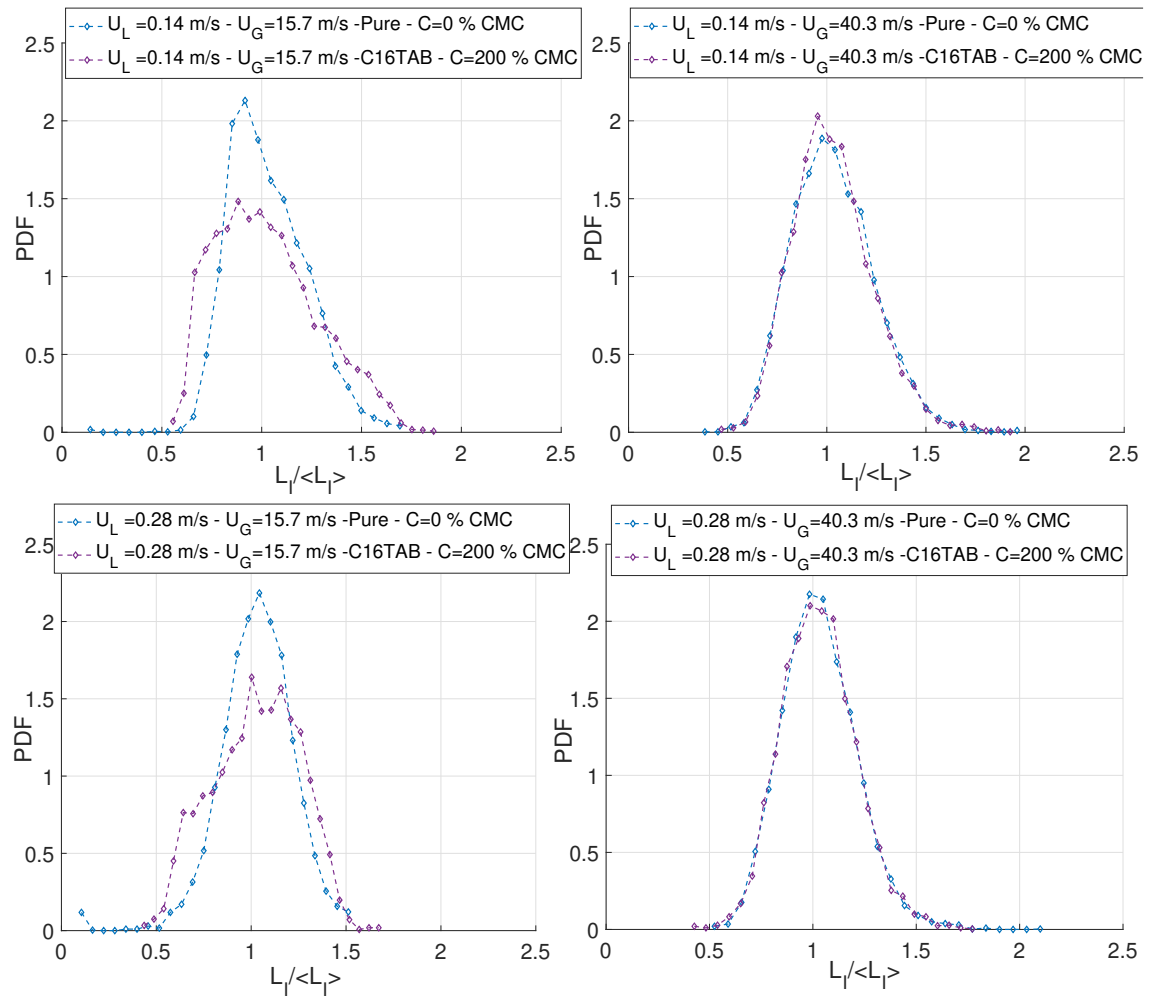


FIGURE III.17 – Distributions de la longueur de jet normalisée par sa valeur moyenne pour les mesures avec C<sub>16</sub>TAB, à différents couples de vitesses liquide et gaz.

### III.3.1.2 Comportement de la longueur intacte moyenne avec les paramètres d'injection sans dopage

Nous commençons par décrire le comportement de la longueur intacte moyenne  $\langle L_I \rangle$  avec les vitesses d'injection liquide (Figure III.18, A) et gaz (Figure III.18, B) sans ajout de tensioactif. Pour la Figure III.18 (B), chaque point avec une barre d'incertitude correspond à une moyenne de trois séries de mesures, reproduites en eau pure lors de chaque campagne réalisée avec un tensioactif différent. Des différences de reproductibilité significatives ont été constatées à faible vitesse gaz ( $<25$  m/s), d'où les grandes barres d'erreur. Une croissance linéaire de  $L_I$  avec la vitesse liquide ainsi qu'une décroissance avec la vitesse gaz, suivie d'une asymptote vers  $U_G=40$  m/s sont mises en évidence (pareillement aux mesures de Delon [22]).

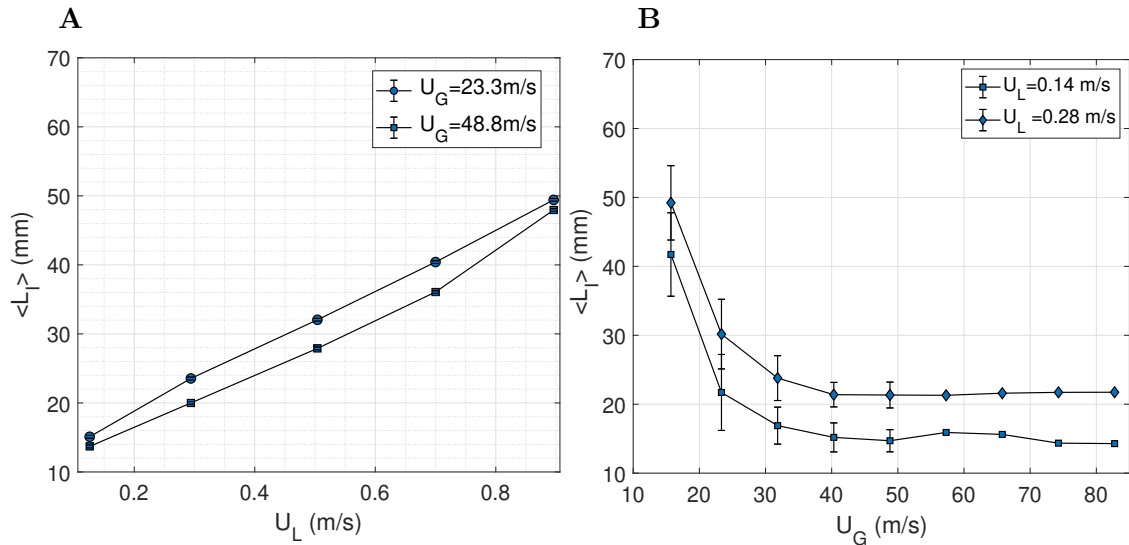


FIGURE III.18 – Comportement de la longueur intacte moyenne avec la vitesse d'injection liquide (A) et gaz (B), eau pure.

### III.3.1.3 Effets des tensioactifs sur la longueur intacte moyenne

La Figure III.19 présente l'évolution de la longueur intacte moyenne du jet avec la vitesse gaz pour l'ensemble des tensioactifs utilisés. Les ordonnées des sous-figures sont identiques dans une optique de comparaison, mais pas les abscisses. Les tensions de surface indiquées ont été mesurées à partir d'échantillons de mélange prélevés en sortie d'injecteur. Notons d'abord que quelque soit le tensioactif ou la concentration utilisés, une évolution asymptotique de la longueur intacte moyenne avec la vitesse gaz est retrouvée. La valeur de  $U_G$  asymptotique fluctue légèrement entre 35, 40 et 50 m/s respectivement pour le  $C_{12}$ TAB, le SDS et le  $C_{16}$ TAB. Les effets des tensioactifs SDS et  $C_{12}$ TAB sur l'allongement du jet liquide sont clairement observés à partir de  $U_G=20$  m/s (régime membrane ou fibre). L'augmentation est de 10-20% pour les deux molécules. Plus la concentration est importante, plus la variation est significative. Le  $C_{16}$ TAB n'augmente la longueur intacte qu'aux vitesses gaz inférieures à 20 m/s.

Par ailleurs, nous avons vu en section III.2.0.1 qu'une plus forte occurrence de brisures du jet liquide avec formation de membranes a lieu avec tensioactif à faible vitesse gaz. Les modes de brisure mixte Rayleigh-Plateau/membrane ou toujours membranes discutés en partie III.2.0.1 sont indiqués par les termes "RP/M" ou "M" respectivement en Figure III.19.

Nous avons vu que SDS et  $C_{12}$ TAB ont les temps d'adsorption les plus courts, le  $C_{12}$ TAB d'autant plus que le SDS (cf. Tableau III.1). Nous traçons en Figure III.20 le rapport des temps caractéristiques de convection dans le jet et d'adsorption. Le temps de

convection du jet liquide est approché comme le rapport de la vitesse liquide injectée et de la longueur intacte moyenne en eau pure :

$$\tau_{LI} = U_L / \langle L_I \rangle_{\text{pure}} \quad (\text{III.2})$$

Où  $\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$  est la longueur intacte moyenne mesurée expérimentalement sans tensioactif. Étant donné que le transport à l'interface est contrôlé par cinétique d'adsorption, c'est ce temps qui est comparé au temps de vie du jet liquide. Les résultats présentés correspondent à la vitesse liquide  $U_L=0,28$  m/s. Les résultats pour  $U_L=0,14$  m/s sont identiques.

L'on constate que SDS et  $C_{12}$ TAB présentent des temps d'adsorption 10 à 100 fois plus rapides que le temps de convection dans le jet, ce qui explique leurs effets significatifs sur la longueur intacte pour l'ensemble des vitesses gaz. Contrairement au  $C_{16}$ TAB, qui est 10 fois plus rapide uniquement à faible  $U_G$  (15 m/s), le rapport des temps descendant à 5 aux vitesses gaz supérieures.

Les trois tensioactifs présentent une tension d'équilibre similaire ( $\sigma_\infty=32-38$  mN/m) aux concentrations supérieures à la cmc. Il semble donc que ce soit la vitesse d'adsorption qui gouverne l'effet sur la longueur de jet. Un tensioactif plus rapide diminuera plus rapidement la tension de surface dynamique. Ce qui explique à priori le plus fort effet du  $C_{12}$ TAB sur la longueur intacte.

La Figure III.21 considère maintenant l'évolution de  $L_I$  avec la vitesse liquide, avec et sans  $C_{12}$ TAB ( $C=200\%$  CMC). De nouveau, la longueur intacte augmente significativement avec le dopage en  $C_{12}$ TAB, de 23 à 34%, et d'autant plus fortement que les vitesses liquide et gaz sont élevées. Le rapport des temps de rupture et d'adsorption estimés de la même façon qu'en Figure III.20 présentent un facteur 100 pour l'ensemble des conditions d'injection présentées ici. Le temps d'adsorption du  $C_{12}$ TAB est donc suffisamment rapide dans ces conditions d'injection pour permettre une adsorption à l'interface significative.

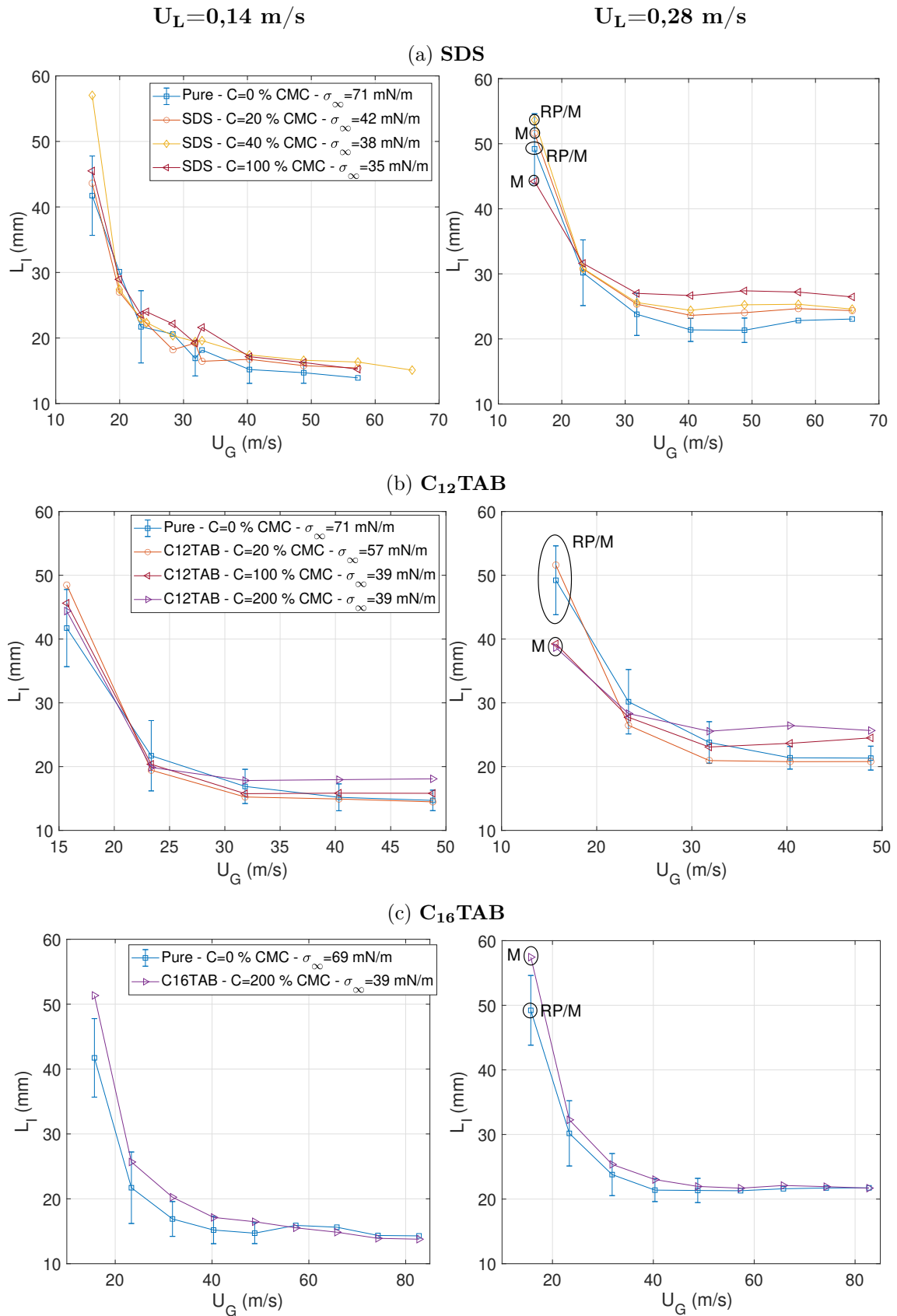


FIGURE III.19 – Évolution de la longueur intacte moyenne avec la vitesse gaz pour différentes concentrations de SDS (a),  $C_{12}TAB$  (b) et  $C_{16}TAB$  (c).  $U_L=0,14 \text{ m/s}$  (gauche) et  $U_L=0,28 \text{ m/s}$  (droite). Les barres verticales représentent l'incertitude sur la grandeur mesurée, basées sur la reproductibilité des mesures. A faible vitesse gaz ( $U_G=15 \text{ m/s}$ ), les modes de brisure Rayleigh-Plateau/membrane ou toujours membranes sont indiqués par les termes "RP/M" ou "M" respectivement. Les échelles en ordonnées sont identiques, mais pas en abscisse.

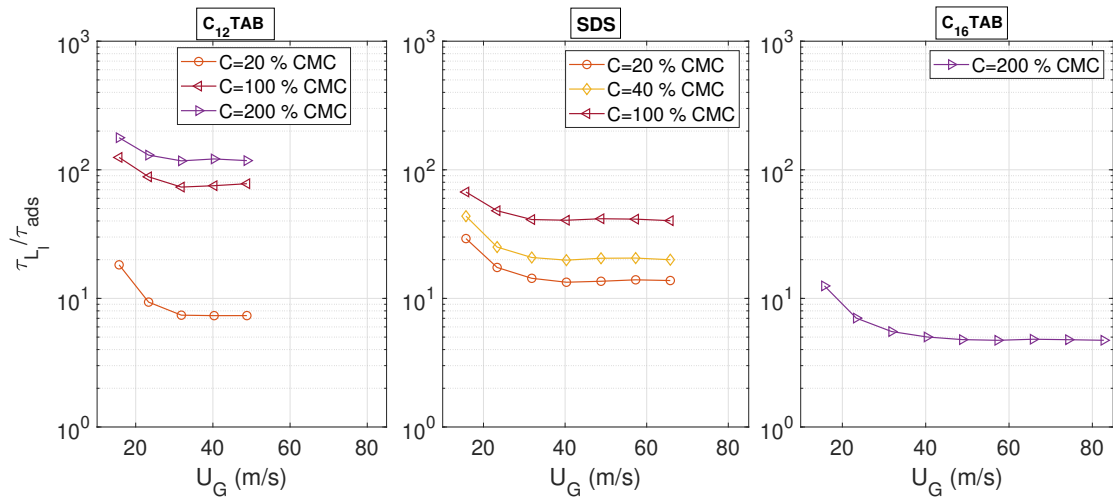


FIGURE III.20 – Rapport du temps de convection dans le jet liquide et d’adsorption du tensioactif en fonction de la vitesse gaz, pour les trois candidats utilisés. Vitesse liquide  $U_L=0,28$  m/s.

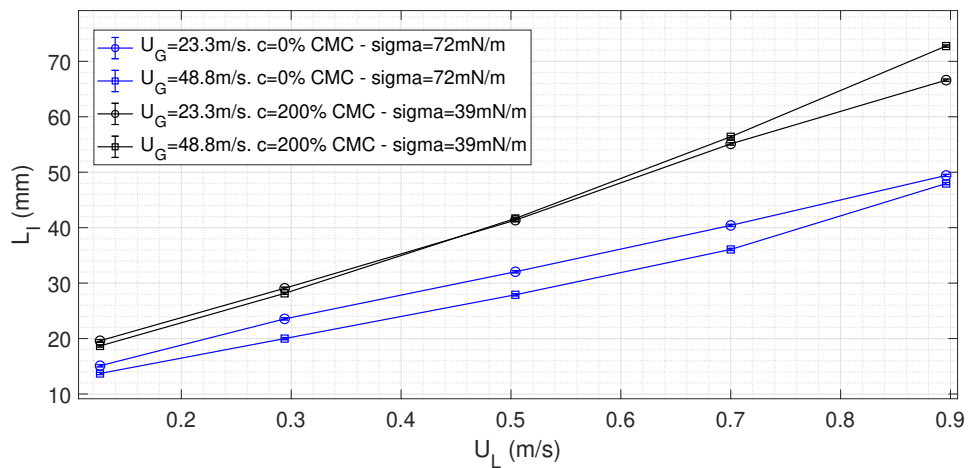


FIGURE III.21 – Évolution de la longueur intacte moyenne avec la vitesse liquide pour du  $C_{12}TAB$  (200% CMC) et de l’eau pure.  $U_G=23$  m/s et 49 m/s. Les barres verticales représentent l’incertitude sur la grandeur mesurée.



### III.3.1.4 Écart-type de la longueur intacte

La Figure III.22 donne l'évolution de l'écart-type de la longueur intacte en fonction de sa moyenne, pour l'ensemble des mesures réalisées. L'évolution est linéaire pour l'ensemble des données, bien que moins consistante dans le cas de la série SDS (a) pour les données à  $U_L=0,28$  m/s. Une interpolation linéaire ( $L_I' \propto \langle L_I \rangle$ ) donne des pentes de 0,25 pour les mesures avec SDS et C<sub>12</sub>TAB (b), 0,20 pour le C<sub>16</sub>TAB (c). Delon [22] avait observé une relation linéaire avec une pente de 0,15 pour différentes géométries de l'injecteur co-axial ( $H_L=5-20$  mm,  $H_G=1,8-24$  mm), et des vitesses d'injection  $U_L=0,17-0,42$  m/s,  $U_G=26-50$  m/s. Charalampous *et al.* [14] ont quant à eux trouvé un coefficient de 0,1 pour une géométrie proche de la notre ( $H_L=2,3$  mm,  $H_G=6$  mm), mais pour des plages de vitesses très différentes :  $U_L=2-8$  m/s (10 à 40 fois plus grandes que les présentes conditions) et  $U_G=47-166$  m/s. Kumar & Sahu [46] ont obtenu un coefficient de 0,2 pour une géométrie  $H_L=3$  mm,  $H_G=4,5$  mm et des vitesses d'injection  $U_L=0,9-1,4$  m/s,  $U_G=42,1-78,6$  m/s.

Puisque la longueur intacte varie au cours du temps, nous avons tracé en Figure III.23 l'écart-type normalisé par  $\langle L_I \rangle$  afin d'évaluer spécifiquement l'effet des tensioactifs sur la fluctuation de la longueur de jet. L'écart-type avec SDS diminue fortement ( $\approx -300\%$ ) pour  $c=1$  cmc, pour la plus faible vitesse gaz uniquement  $U_G=15$  m/s et  $U_L=0,14$  m/s (a), et à l'inverse augmente de l'ordre de 20% pour  $U_L=0,28$  m/s. Ces variations de l'écart-type à cette vitesse gaz peuvent être imputées au changement de régime de brisure du jet (cf. III.2.0.1). Le C<sub>12</sub>TAB (b) diminue l'écart-type lorsque la concentration augmente, pour  $24 < U_G < 40$  m/s, excepté à 20% cmc où les courbes sont presque confondues. Aux vitesses gaz minimales et maximales variées ici, peu de différences sont observées. Finalement, le C<sub>16</sub>TAB (c) ne semble pas avoir d'effet significatif sur l'écart-type excepté pour  $U_G=15$  m/s où des réductions significatives apparaissent pour les deux vitesses liquides.

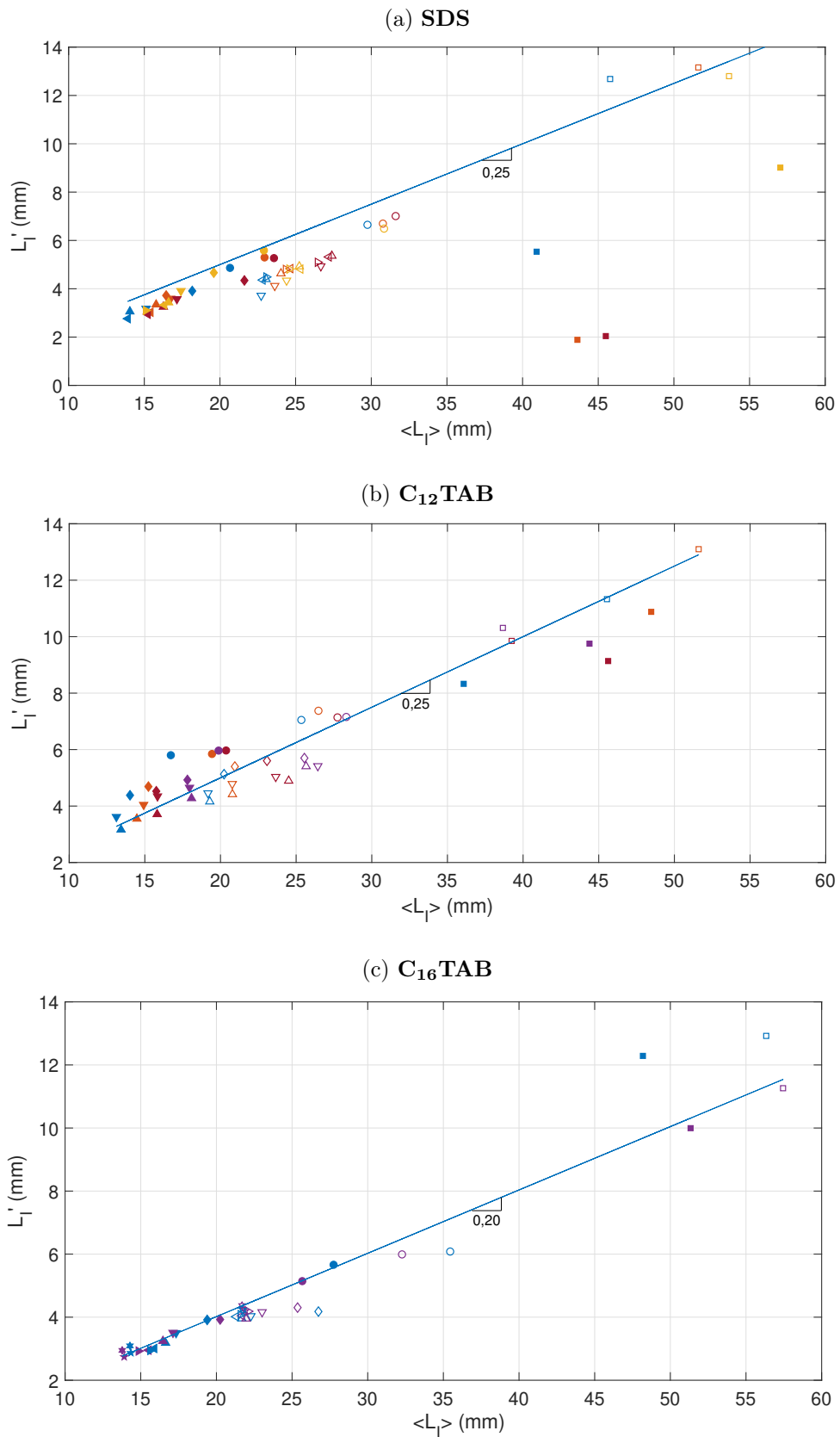


FIGURE III.22 – Corrélations entre l'écart-type et la valeur moyenne de la longueur inactive, pour le SDS (a), C<sub>12</sub>TAB (b) et C<sub>16</sub>TAB (c). Eau pure (bleu), 20% CMC (orange), 40% CMC (or), 60% CMC (cyan), 80% CMC (vert), 100% CMC (bordeaux), 200% CMC (violet). Symboles pleins :  $U_L=0,14$  m/s, Symboles vides :  $U_L=0,28$  m/s.  $\square$   $U_G=15,7$  m/s  $\circ$   $U_G=23,3$  m/s  $\diamond$   $U_G=31,8$  m/s  $\nabla$   $U_G=40,3$  m/s  $\triangle$   $U_G=48,8$  m/s  $\triangleleft$   $U_G=57,3$  m/s  $\triangleright$   $U_G=65,8$  m/s  $*$   $U_G=74,3$  m/s  $\star$   $U_G=82,8$  m/s.

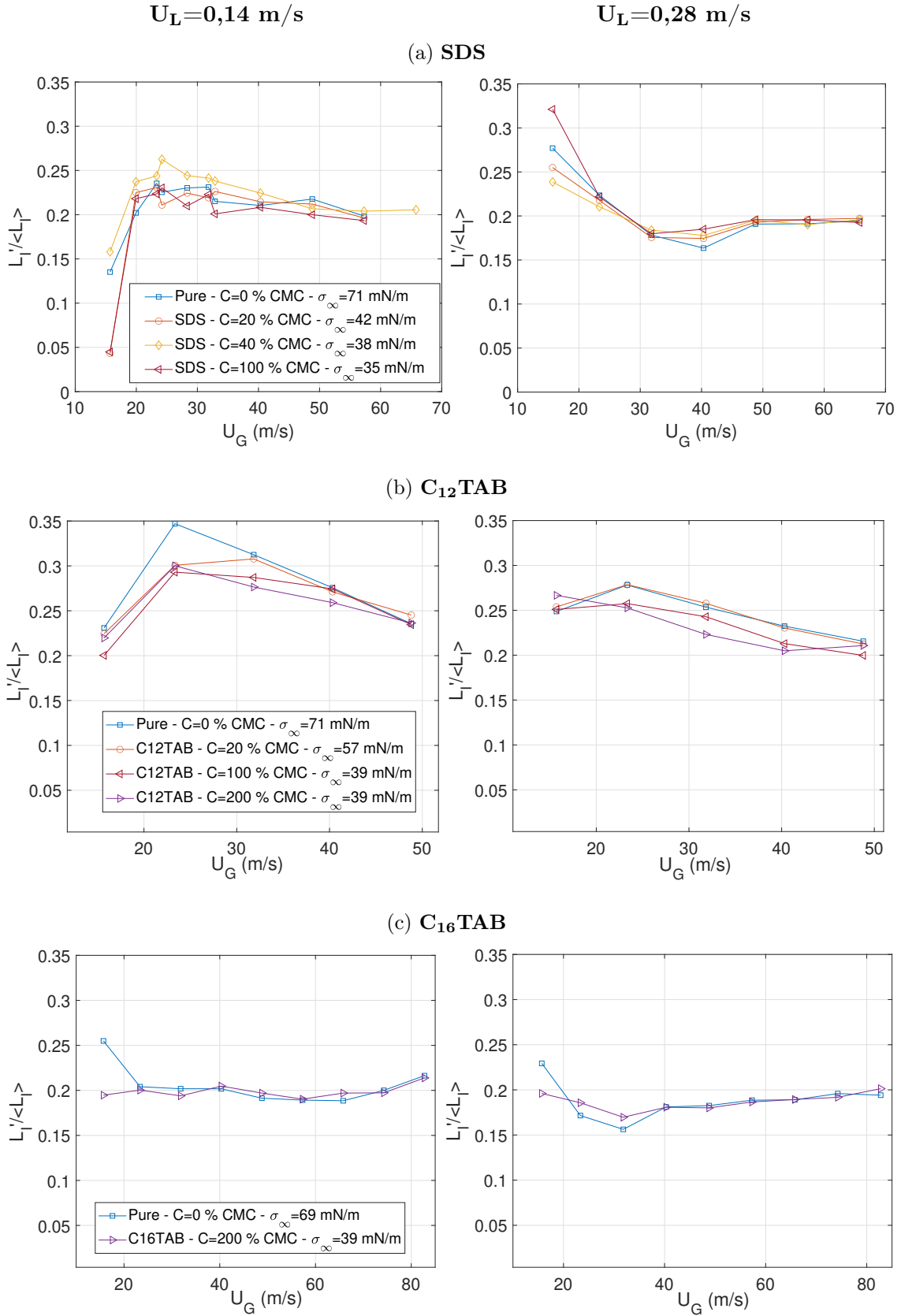


FIGURE III.23 – Évolution de l'écart-type de la longueur de jet normalisé par la moyenne avec la vitesse gaz, pour différentes concentrations de SDS (a), C<sub>12</sub>TAB (b) et C<sub>16</sub>TAB (c).  $U_L=0,14$  m/s (gauche) et  $U_L=0,28$  m/s (droite).

### III.3.1.5 Effets des tensioactifs sur la longueur de brisure

Nous avons présenté les effets des tensioactifs sur la longueur intacte du jet liquide. Nous introduisons maintenant les mesures de longueurs de brisure. L'évolution de  $\langle L_B \rangle$  avec les conditions d'injection pour de l'eau pure est fournie en Annexe A.2, Figure A.4. Les valeurs de la longueur de brisure moyenne sont par ailleurs comparées à la longueur de jet moyenne. Globalement, la longueur de brisure moyenne est 20% plus grande que la longueur intacte. Seules les données à vitesse liquide variée et vitesse gaz fixée  $U_G=23$  m/s, ainsi que les mesures à ( $U_G=15$  m/s,  $U_L=0,14;0,28$  m/s) présentent des écarts de l'ordre de 50% entre les deux grandeurs.

La Figure III.24 introduit ensuite les comparaisons de mesures de la longueur de brisure moyenne avec tensioactifs et en eau pure. Les comportements de  $L_B$  entre eau pure et tensioactifs à différentes concentrations sont les mêmes que ceux de la longueur de jet intacte (cf. Figure III.19). La différence principale est que le  $C_{12}TAB$  (Figure III.24b) augmente la longueur de brisure de 40% environ aux vitesses gaz supérieures à 30 m/s, alors que la longueur intacte était augmentée de 20% dans les mêmes conditions.

Si l'on s'intéresse au rapport du temps de brisure du jet liquide et du temps d'adsorption pour chaque condition expérimentale (cf. Figure A.5, Annexe A.3), les ordres de grandeurs retrouvés sont les mêmes que ceux obtenus pour le rapport  $\tau_{LI}/\tau_{ads}$  (Figure A.5), et les conclusions identiques : le  $C_{12}TAB$  et le SDS sont adsorbés très rapidement avant la rupture du jet liquide, et permettent une réduction significative de la tension de surface à l'interface. Ce qui induit un effet important sur la longueur de brisure, d'autant plus à concentration élevée.

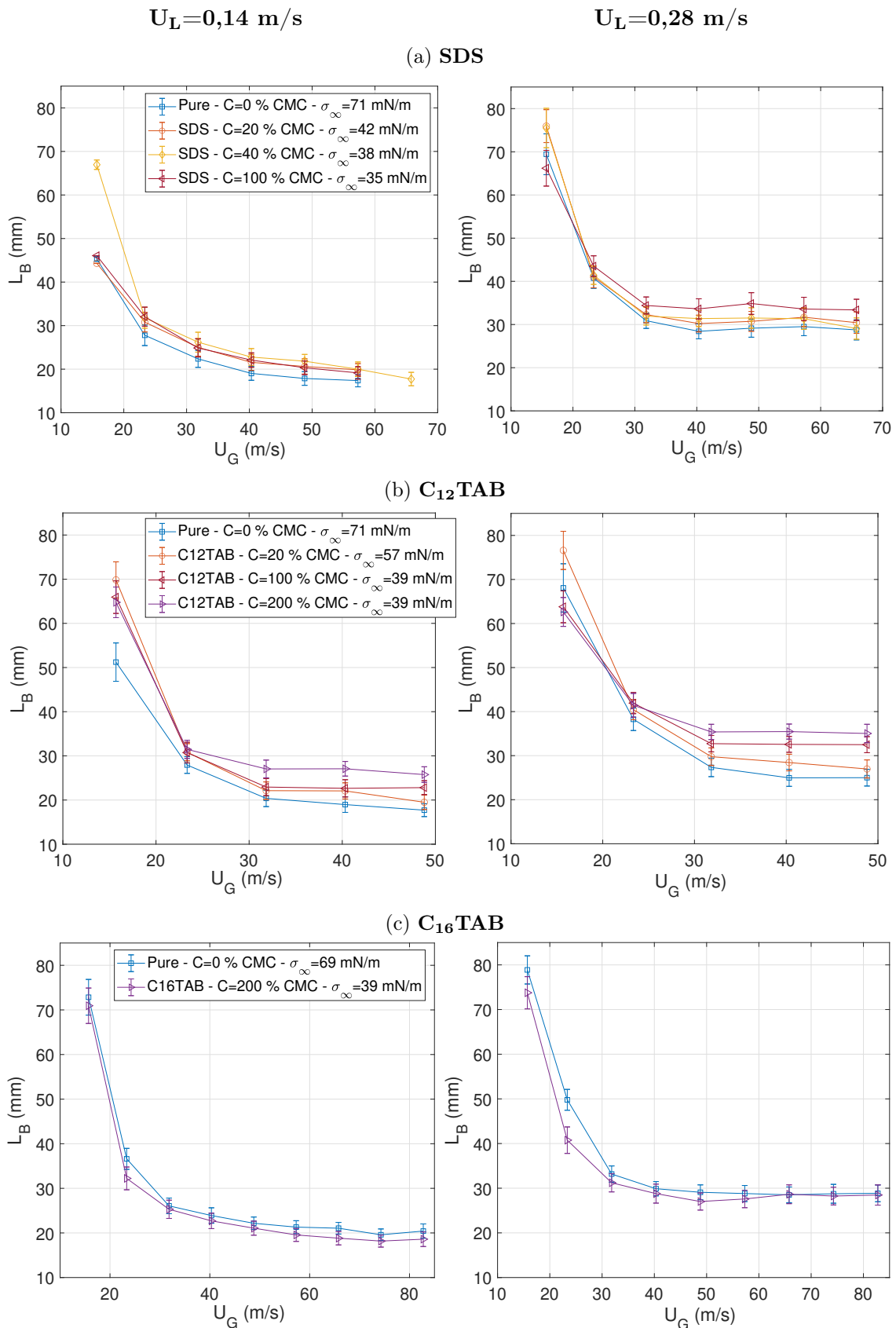


FIGURE III.24 – Évolution de la longueur de brisure moyenne avec la vitesse gaz pour différentes concentrations de SDS (a), C<sub>12</sub>TAB (b) et C<sub>16</sub>TAB (c).  $U_L=0,14$  m/s (gauche) et  $U_L=0,28$  m/s (droite). Les barres verticales représentent l'écart-type sur la grandeur mesurée.

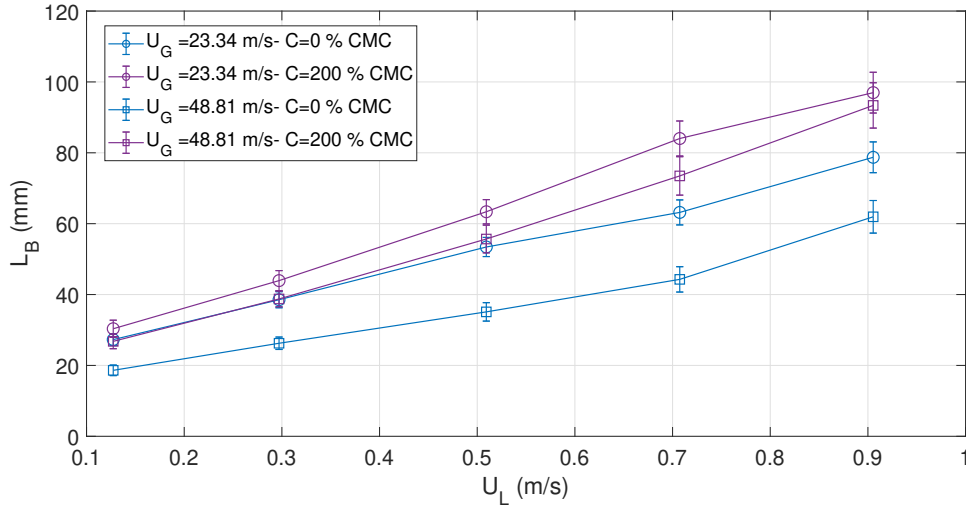


FIGURE III.25 – Évolution de la longueur de brisure moyenne avec la vitesse liquide pour du  $C_{12}TAB$  (200% CMC) et pour de l'eau pure seule.  $U_G=23$  m/s et 49 m/s. Les barres verticales correspondent à l'écart-type.

### III.3.1.6 Effets des tensioactifs sur la fréquence de brisure du jet

La Figure III.26 expose le comportement de la fréquence de brisure du jet liquide avec les vitesses d'injection pour de l'eau pure. La fréquence augmente linéairement avec la vitesse gaz, et reste constante lorsque la vitesse liquide est variée. Cette fréquence est calculée comme l'inverse de l'écart temporel moyen entre les différentes longueurs de brisure (qui sont obtenues par recherche des maximums locaux dans le signal  $L_I = f(t)$ , cf. section III.3.1). L'écart-type de la fréquence de brisure mesurée est par ailleurs très important, de l'ordre de deux à trois fois la fréquence mesurée comme l'attestent les barres verticales.

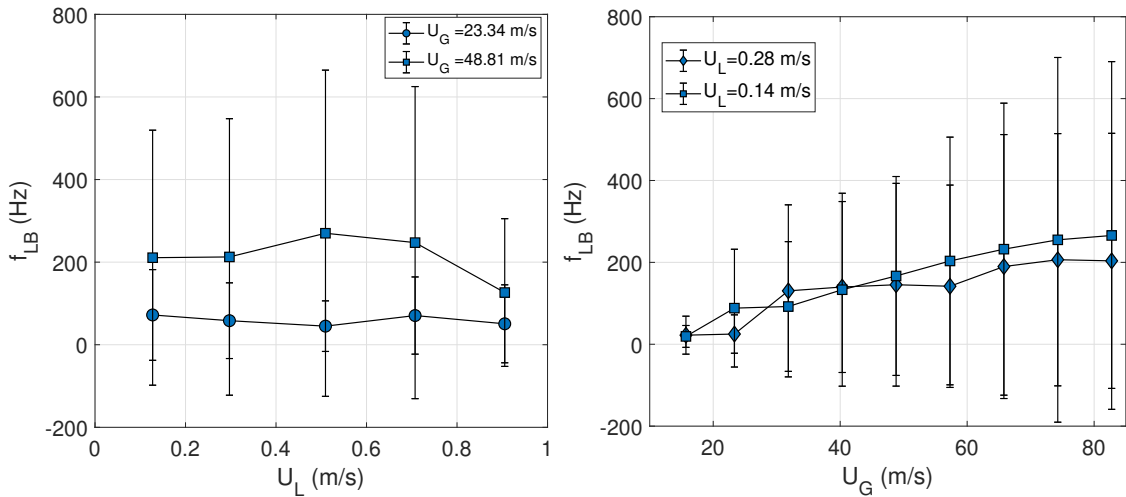


FIGURE III.26 – Évolution de la fréquence de brisure du jet liquide avec les vitesses gaz (gauche) et liquide (droite) pour de l'eau pure. Les barres d'erreur correspondent à l'écart-type.

Les mesures de la fréquence de brisure du jet liquide avec tensioactifs sont introduites en Figure III.27 pour le  $C_{12}TAB$  en fonction de la vitesse gaz (haut) et liquide (bas), et Figure III.28 pour le  $C_{16}TAB$ . Elles sont normalisées par la fréquence de brisure obtenue en eau pure. L'écart-type n'est pas indiqué, mais est important. Ce dernier peut être lu sur les graphiques de la fréquence de brisure absolue pour les mêmes données, fournis en Annexe A.4. Avec tensioactif aussi, la fréquence de brisure suit une évolution linéaire

avec la vitesse gaz, et constante avec la vitesse liquide. Les résultats concernant le SDS ne sont pas montrés ici car les mesures ne sont pas consistantes avec les autres données, résultant probablement d'un mauvais traitement ou d'un souci d'éclairage. Mais ils sont fournis également en Annexe A.4 (Figure A.7a).

Malgré un écart-type toujours important, la fréquence de brisure tend à être fortement réduite par le C<sub>12</sub>TAB : jusqu'à 40% (Figure III.27). Un nouvel effet spécifique au C<sub>12</sub>TAB est donc ici constaté. Cet effet est peut être corrélé à la diminution de l'amplitude de déplacement radial du jet montrée précédemment (cf section III.3.2), qui peut conduire à diminuer la fréquence de découpage du jet liquide. A l'inverse, la fréquence augmente avec le C<sub>16</sub>TAB (Figure III.28a), de l'ordre de 20 à 50%. Il est cependant difficile d'affirmer si les variations sont significatives ou non, tant pour le C<sub>12</sub>TAB que pour le C<sub>16</sub>TAB, mais l'ensemble des données  $f_{LB\ surf}/f_{LB\ pure}$  sont regroupées autour d'une valeur inférieure ou supérieure à 1, ce qui traduit un effet global.

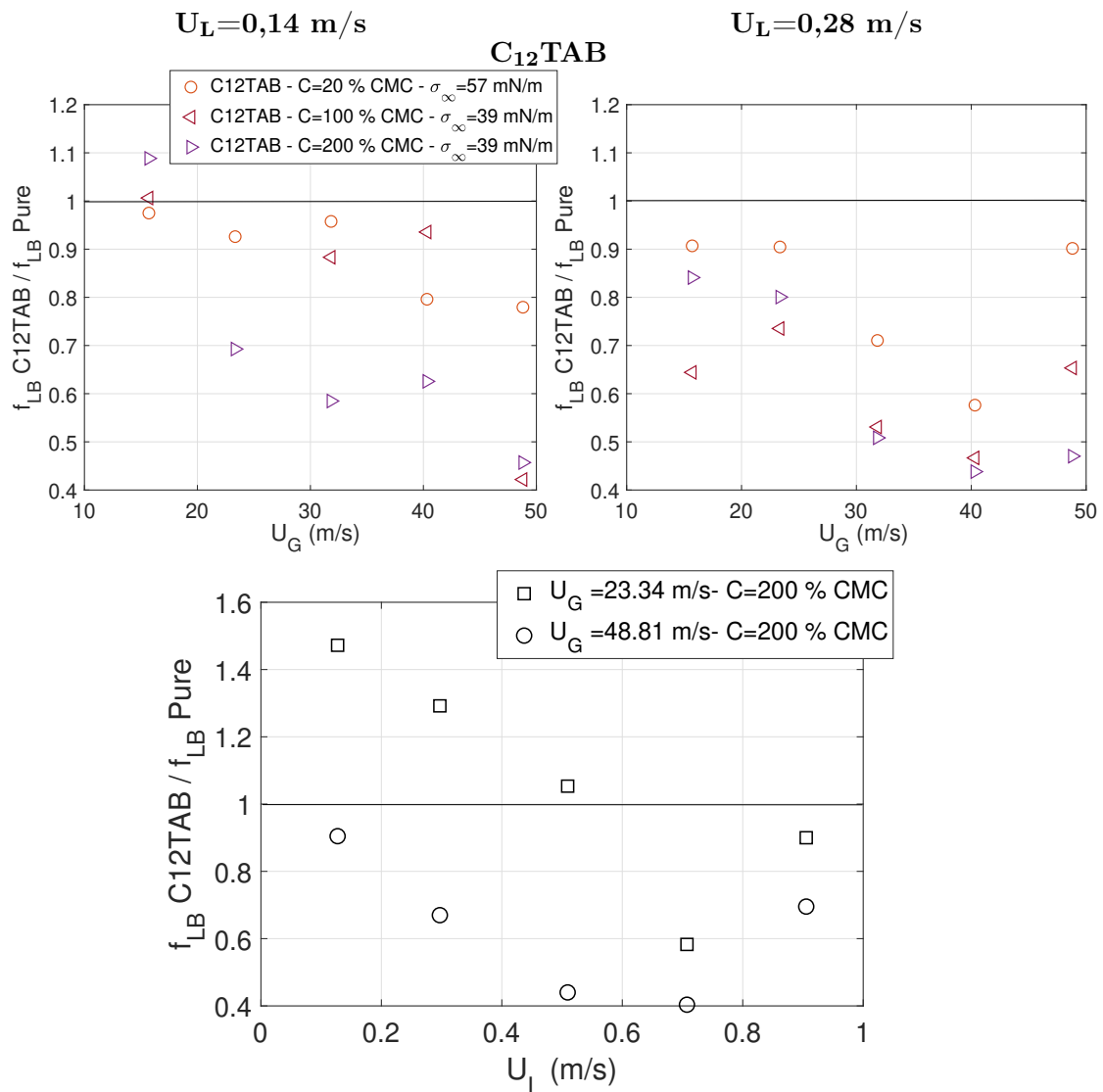


FIGURE III.27 – Évolution de la fréquence de brisure du jet liquide en fonction de la vitesse gaz (gauche : U<sub>L</sub>=0,14 m/s, droite : U<sub>L</sub>=0,28 m/s), et de la vitesse liquide (bas). Chaque point correspond à une fréquence obtenue pour une concentration de C<sub>12</sub>TAB et normalisée par la fréquence en eau pure.

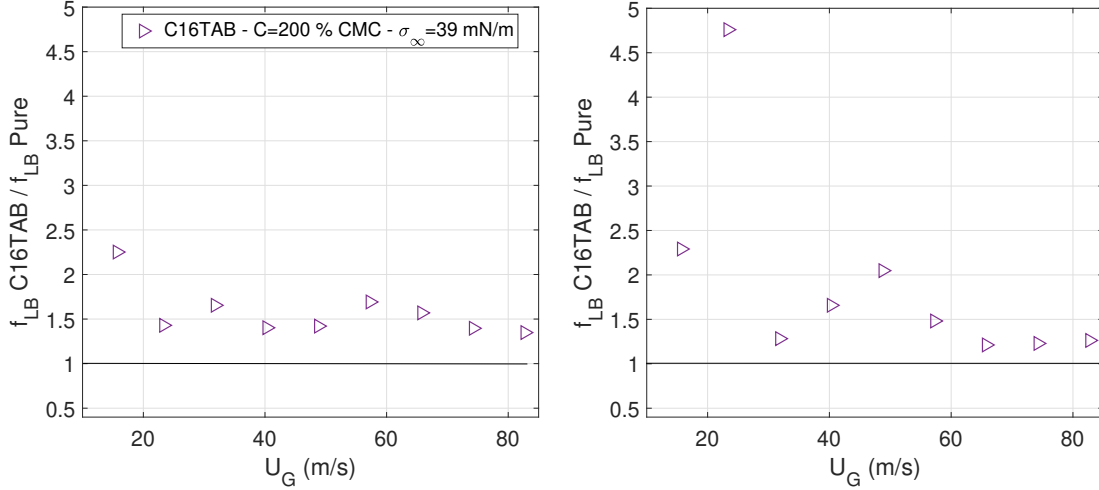
(a) **C<sub>16</sub>TAB**

FIGURE III.28 – Évolution de la fréquence dominante de brisure du jet liquide en fonction de la vitesse gaz (gauche :  $U_L=0,14$  m/s, droite :  $U_L=0,28$  m/s), pour les mesures avec C<sub>16</sub>TAB (a). Chaque point correspond à une fréquence obtenue pour une concentration et normalisée par la fréquence en eau seule.

Une première cause à ces observations pourrait ici être attribuée à un temps d'adsorption plus rapide du C<sub>12</sub>TAB relativement aux deux autres tensioactifs, qui conduit à une plus forte réduction de la tension de surface. Ce pourrait être le cas si seul le C<sub>12</sub>TAB influait  $f_{LB}$ . Mais ici, le C<sub>16</sub>TAB augmente également la fréquence alors qu'il ne présente pas d'effet significatif sur les longueurs de jet intact ni de brisure.

Nous analysons maintenant pour chaque fluide et différentes vitesses gaz le rapport des temps typiques d'adsorption et de pulsation du jet liquide sans tensioactif (Figure ??). Ce dernier est défini comme l'inverse de la fréquence de brisure mesurée :

$$\tau_{\text{puls}} = 1/f_{LB \text{ pure}} \quad (\text{III.3})$$

A forte concentration ( $c=1$  et  $2$  cmc), le C<sub>12</sub>TAB présente un temps d'adsorption 2 à 10 fois plus rapide que le temps de pulsation du jet, contrairement au C<sub>16</sub>TAB qui est adsorbé plus lentement que le temps moyen entre deux brisures du jet. Ces résultats peuvent expliquer la réduction de la fréquence de brisure par le C<sub>12</sub>TAB, mais plus difficilement les effets observés du C<sub>16</sub>TAB. Même en considérant le temps de brisure calculé sur un temps de convection dans le jet liquide (Figure III.20), le C<sub>16</sub>TAB est trop lent pour être adsorbé avant la rupture du jet. Cependant, les mesures du temps de pulsation du jet présentent un fort écart-type (de l'ordre de 100%).



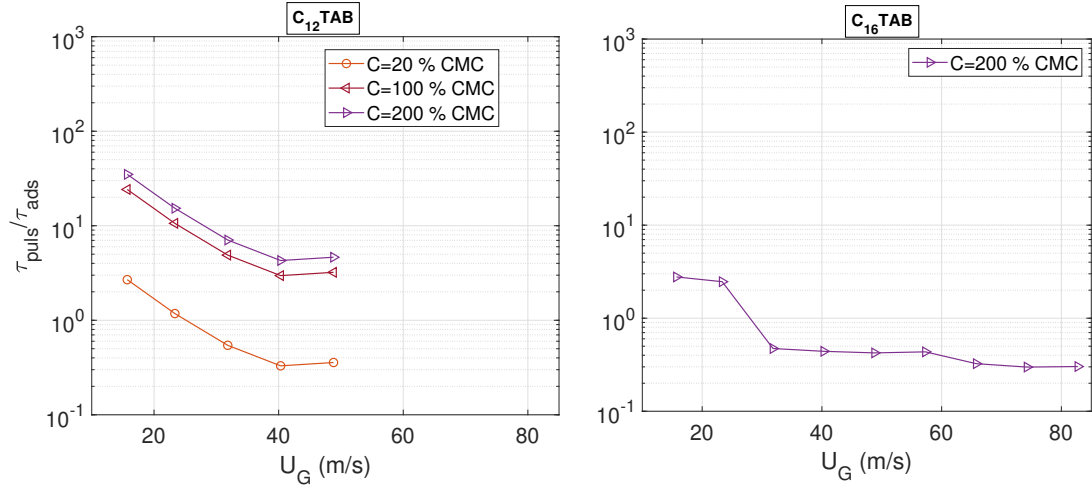


FIGURE III.29 – Rapport du temps typique de pulsation du jet liquide sans dopage (équation III.3), et d’adsorption du tensioactif en fonction de la vitesse gaz, pour les trois candidats utilisés. Vitesse liquide  $U_L=0,28$  m/s.

### III.3.1.7 Discussion

Les mesures des longueurs intacte et de brisure du jet liquide ont mis en évidence une augmentation significative de ces dernières avec la concentration en tensioactifs SDS et  $C_{12}TAB$ . Il a été montré par ailleurs que  $L_I$  et  $L_B$  suivent une évolution linéaire avec la vitesse liquide (Figures III.21 et III.25), et que l’augmentation relative de la longueur de brisure avec  $C_{12}TAB$  est constante avec  $U_L$ . Le temps de vol moyen du jet liquide à la plus faible vitesse liquide, pour de l’eau pure et  $U_G=23,3$  m/s, est  $t_{vol}(U_L = 0,13$  m/s)  $\approx L_B/U_L = 1,2 \cdot 10^{-1}$  s. Pour la vitesse la plus élevée  $U_L=0,9$  m/s,  $t_{vol}(U_L = 0,9$  m/s)  $\approx 5 \cdot 10^{-2}$  s. Le temps avant brisure est donc divisé par deux entre les extremums de vitesses liquides variés ici, impliquant théoriquement une plus faible quantité de tensioactif pouvant arriver à l’extrémité du jet à  $U_L$  élevé, et donc une plus faible augmentation de  $L_B$ . Pourtant, c’est le phénomène inverse qui est observé. Le troisième candidat, le  $C_{16}TAB$ , ne présente pas de changement significatif sur les longueurs moyennes excepté à très faible vitesse gaz  $U_G=15$  m/s. Nous avons vu que ces différents effets sont imputables aux temps de transport plus ou moins rapides devant le temps de brisure du jet selon la concentration et le tensioactif utilisé.

Différents modèles de prédiction de la longueur de brisure du jet prenant en considération la tension de surface vont maintenant être confrontés aux résultats expérimentaux.

Eroglu *et al.* [29] ont été parmi les premiers à proposer un modèle empirique de la longueur intacte en atomisation assistée, et tenant compte de la tension de surface. Celui-ci est basé sur une dépendance de  $L_I$  aux paramètres d’injection comme suit :

$$\frac{L_I}{H_L} = n \cdot We^{-0,4} \cdot Re_L^{0,6} \quad (III.4)$$

avec  $We = \frac{H_L \cdot \rho_G \cdot (U_G - U_L)^2}{2 \cdot \sigma}$ ,  $Re_L = \frac{H_L \cdot U_L}{\nu_L}$  et  $n = 0,66$ . Un essai de ce modèle avec nos données expérimentales montre un bon accord pour les valeurs de  $L_I$  inférieures à  $8H_L$  i.e. inférieures à 40 mm, comme l’atteste la Figure III.30. De plus, les pré-facteurs sont inférieurs à celui de Eroglu *et al.* [29] ( $n = 0,66$  dans l’équation III.4) : nous obtenons  $n = 0,18$  pour les données avec SDS (Figure III.30, gauche), et  $n = 0,14$  pour les données avec  $C_{12}TAB$  (Figure III.30, droite).

Une modélisation de la longueur de brisure du jet liquide a été proposée plus récemment par Delon [22]. Celle-ci est basée sur la compétition entre convection du jet liquide assisté

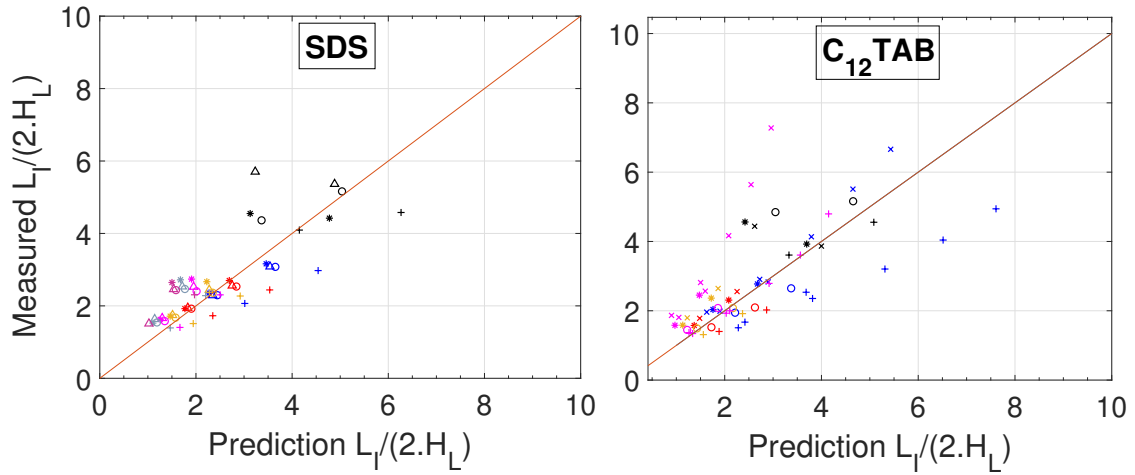


FIGURE III.30 –  $L_I$  mesurée versus  $L_I$  prédite par le modèle d'Eroglu *et al.* [29] (équation III.4), pour les données avec SDS et  $C_{12}TAB$ . La ligne rouge représente la fonction affine  $y=x$ .  $U_G=15,7$  m/s (noir),  $U_G=23,3$  m/s (bleu),  $U_G=31,8$  m/s (rouge),  $U_G=40,3$  m/s (or),  $U_G=48,8$  m/s (magenta). + : Eau pure, o : C=20% CMC, \* C=100% CMC, × C=200% CMC.

et instabilité de Rayleigh-Plateau menant à la rupture du jet liquide, i.e. :

$$T_{vol} = T_{brisure} \quad (III.5)$$

$T_{vol}$  est le rapport de la longueur de brisure moyenne et de la vitesse convective du jet :

$$T_{vol} = \frac{L_B}{U_L(z)} \quad (III.6)$$

$T_{brisure}$  est un temps de croissance de l'instabilité de Rayleigh-Plateau :

$$T_{brisure} = \frac{1}{U^*} = \left( \frac{\rho_L a^3}{\sigma} \right)^{1/2} \quad (III.7)$$

Où  $U^*$  est la vitesse de récession capillaire. Les hypothèses simplificatrices sont que le rayon  $a$  et la vitesse  $U_L$  le long du jet restent égaux aux valeurs à l'injection,  $H_L/2$  et  $U_L$  respectivement. Il n'y a pas non plus de dépendance à la vitesse d'entraînement gaz, ce qui est valable dans notre cas lorsque  $L_B$  suit une évolution asymptotique avec  $U_G$  au delà de 30-40 m/s (cf Figure III.19). Ce modèle avait été comparé à des mesures expérimentales pour différentes géométries d'injecteurs et vitesses liquides-gaz, mais la tension de surface n'avait pas été variée. Un accord à  $\pm 20\%$  avait été obtenu pour des vitesses gaz supérieures à 60 m/s environ dans notre configuration géométrique. La loi d'échelle prédit l'évolution de la longueur de brisure suivante :

$$\frac{L_B}{H_L} \propto \frac{U_L}{U^*} \quad (III.8)$$

où  $U^* = \sqrt{\frac{\sigma}{\rho_L H_L}}$  est la vitesse de récession.

Nous précisons que Delon [22] mesurait la longueur intacte et non la longueur de brisure. Nous confrontons dans un premier temps le modèle à nos données de longueurs intactes car les données de longueurs de brisure ont été obtenues plus tardivement. Mais nous avons vu que la longueur de brisure est globalement 20% supérieure à la longueur intacte, l'utilisation de la longueur intacte dans le modèle est donc justifiée. Il s'agit dans un premier temps de vérifier que la longueur de brisure évolue bien avec chaque paramètre de contrôle en accord

avec le modèle. Nous avons déjà établi que les longueurs intacte et de brisure évoluent linéairement avec la vitesse liquide (Figure III.18), et suivent une asymptote avec la vitesse gaz au delà de  $U_G=30-40$  m/s. Ces comportements sont également vérifiés en présence de tensioactif (Figures III.19 et III.21). La Figure III.31 confronte d'abord nos mesures de longueur intacte avec le modèle, pour les séries SDS et  $C_{16}TAB$ , puis pour les séries avec  $C_{12}TAB$  en Figure III.32. Une évaluation du coefficient linéaire de l'équation III.8 est réalisée à partir de l'évolution de  $L_I/H_L$  fonction de  $U_L/U^*$  pour différents  $\sigma$ . L'intention est de choisir différentes valeurs de tension de surface dans le modèle, correspondant à différentes hypothèses :

- $\sigma=\sigma_0$  qui suppose une adsorption nulle à l'interface : la tension de surface à l'extrémité du jet vaut celle de l'eau pure.
- $\sigma=\sigma_\infty$ , l'adsorption est complète et l'interface est saturé au moment de la brisure. La tension de surface vaut celle d'équilibre du mélange avec tensioactif.
- Une valeur intermédiaire  $\sigma = \sigma_\infty + (\sigma_0 - \sigma_\infty)/2$ , dans l'hypothèse où l'adsorption est partielle : la tension de surface à l'extrémité du jet liquide est abaissée mais n'a pas encore atteint la tension de surface d'équilibre du mélange.

Le calcul d'une tension de surface intermédiaire à  $\sigma_\infty$  et  $\sigma_0$  est en fait similaire à la formule de Hua & Rosen [38] (cf. équation I.46) :

$$\sigma(t) = \sigma_\infty + \frac{\sigma_0 - \sigma_\infty}{1 + t/\tau} \quad (\text{III.9})$$

où  $\tau$  est un paramètre d'ajustement obtenu à partir des mesures de la tension de surface dynamique d'un tensioactif et d'une concentration données. Nous précisons également que le choix  $\sigma = \sigma_0$  n'est pas tracé pour le SDS et le  $C_{16}TAB$  car les mesures sont limitées à deux valeurs de  $U_L$ .

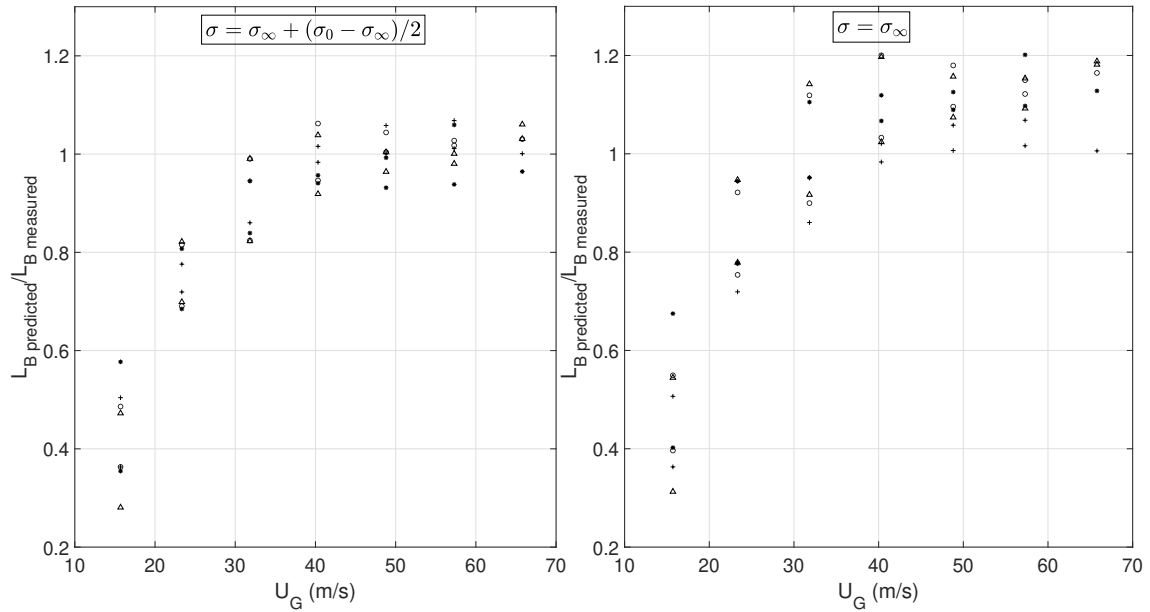
L'on constate sur l'ensemble des Figures que la longueur de brisure prédite se rapproche de la longueur intacte mesurée, dans la zone asymptotique observée pour chaque série de mesure (20-40 m/s, cf Figure III.19). Les résultats présentés sur les Figures III.31 et III.32 sont commentés pour chaque tensioactif :

- Tout d'abord pour le SDS, l'évolution du rapport prédiction-mesure est proche de 1 dans la zone  $L_B$  asymptotique ( $>40$  m/s), pour les deux valeurs de tensions de surface choisies. Le rapport est proche de 1 à  $\pm 10\%$  pour l'eau pure (+). Cependant, l'on constate un meilleur accord pour un  $\sigma$  intermédiaire, tandis que de plus grandes déviations surviennent lorsque  $\sigma = \sigma_\infty$ . Ce résultat semble donc signifier que l'adsorption du SDS est partielle.
- La confrontation du modèle aux mesures avec le  $C_{16}TAB$  est limitée par la faible variation de la vitesse liquide et de la concentration. Il est donc difficile de se prononcer ici sur la signification des variations observées en fonction du  $\sigma$  choisi. L'accord semble néanmoins bon pour les valeurs asymptotiques et en prenant un  $\sigma$  intermédiaire. Toutefois, l'absence de variation de la longueur de brisure avec ajout de ce tensioactif montre déjà l'absence d'adsorption avant brisure.
- Enfin pour en venir au  $C_{12}TAB$ , la plus grande variation des paramètres vitesse liquide et concentration permet une meilleure appréciation de la confrontation du modèle aux mesures. Ici l'influence du paramètre  $\sigma$  est notable. La divergence prédiction-mesure est importante sous l'hypothèse d'une adsorption nulle ( $\sigma=\sigma_0$ , Figure III.32, gauche) puis est réduite avec un  $\sigma$  intermédiaire (droite) pour enfin arriver à une bonne concordance pour un  $\sigma=\sigma_\infty$  (bas). Ainsi, ce résultat semble révéler que l'adsorption est complète avec ce tensioactif. De plus, c'est avec ce tensioactif que les plus fortes augmentations de la longueur de brisure moyenne ont été observées. En outre, les temps de transport du  $C_{12}TAB$  aux concentrations supérieures à la cmc (estimés dans la section III.1.1) sont les plus rapides. Tout semble donc indiquer que les fortes concentrations de  $C_{12}TAB$  réduisent fortement la tension superficielle du jet, ce qui conduit à de plus grandes augmentations des

longueurs intacte et de brisure moyennes.

Cependant, la tension de surface varie dans le modèle (équation III.8) en racine carrée. Or dans nos expériences, la tension de surface est réduite d'un facteur deux, ce qui implique une variation de la longueur prédite de 40%. Ici, les écarts prédiction-mesures pour des choix de  $\sigma = \sigma_\infty$  et  $\sigma = \sigma_0$  sont plutôt de l'ordre de 20%. Donc les conclusions quant à l'effet de  $\sigma$  uniquement sur la longueur de brisure sont difficiles. Toutefois, les comparaisons des temps typiques d'adsorption aux temps de rupture du jet montraient que le C<sub>12</sub>TAB est adsorbé plus rapidement que les autres tensioactifs aux concentrations maximales, ce qui conforte les essais du modèle.

### SDS



### C<sub>16</sub>TAB

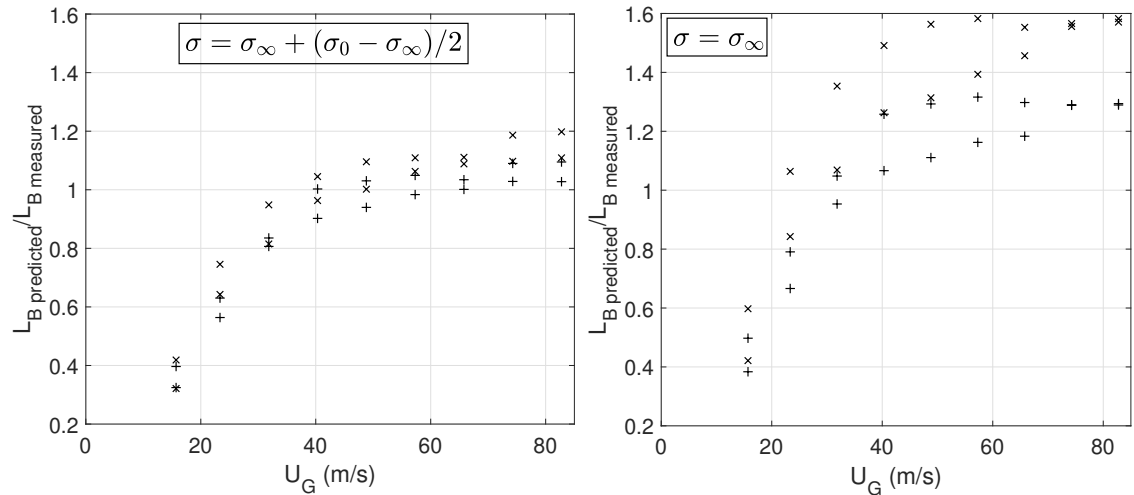


FIGURE III.31 – Rapport de  $L_B$  prédite (équation III.8) versus  $L_I$  mesurée, en fonction de la vitesse gaz pour les données avec SDS (haut) et C<sub>16</sub>TAB (bas). Essais avec  $\sigma = \sigma_\infty + (\sigma_0 - \sigma_\infty)/2$  (gauche) et  $\sigma = \sigma_\infty$  (droite). + : Eau pure, o : C=20% CMC,  $\Delta$  C=40% CMC, \* C=100% CMC, x C=200% CMC.

Afin de conclure cette section, il est donc important de garder à l'esprit qu'un tensioactif n'affecte pas seulement la tension de surface, mais également les propriétés visco-élastiques d'une interface. L'étude de Ellis *et al.* [28] permet de mieux appréhender qualitativement

### C<sub>12</sub>TAB

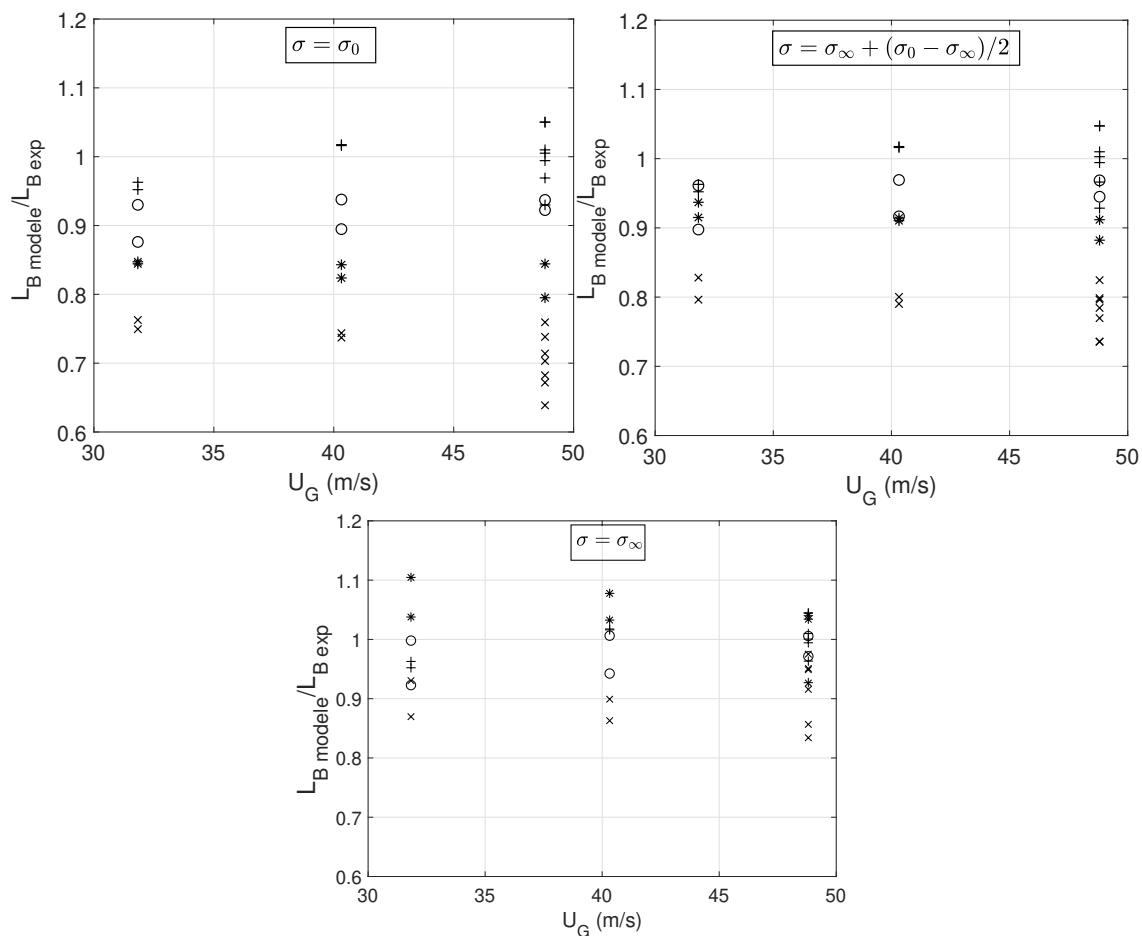


FIGURE III.32 – Rapport de  $L_B$  prédite (équation III.8) versus  $L_B$  mesurée, en fonction de la vitesse gaz pour les données avec C<sub>12</sub>TAB. Essais avec  $\sigma = \sigma_0$  (gauche),  $\sigma = \sigma_\infty + (\sigma_0 - \sigma_\infty)/2$  (droite), et enfin  $\sigma = \sigma_\infty$ . + : Eau pure, o : C=20% CMC, \* C=100% CMC, x C=200% CMC.

les propriétés d'un tensioactif qui affectent la déstabilisation d'une nappe liquide. Les auteurs injectent un liquide pur permettant d'abaisser la tension de surface jusqu'à environ 35 mN/m (Propane-1-ol) dans une buse pressurisée. Puis ils comparent la formation du spray obtenu au cas en eau seule puis avec ajout de différents tensioactifs. Ils observent l'absence d'effet du Propane-1-ol sur la longueur de brisure de la nappe liquide, tandis que certains tensioactifs (pas tous) augmentent cette distance de brisure. Le Propane-1-ol modifie seulement la tension de surface du fluide, tandis que les tensioactifs peuvent également changer ses propriétés rhéologiques. Ces résultats démontrent que le mécanisme d'atomisation -sur cette expérience- est affecté par d'autres mécanismes que le seul abaissement de la tension de surface. A priori, aucun modèle n'intègre les propriétés visco-élastiques d'un fluide dans la prédiction de la longueur de brisure en atomisation assistée. Une des questions subsistante est donc de savoir si les allongements plus importants du jet mesurés avec C<sub>12</sub>TAB comparés aux observations avec SDS dans les mêmes conditions d'injection sont uniquement dûs à une plus faible tension de surface à l'extrémité du jet (car l'adsorption est plus rapide qu'avec SDS), ou sont également couplés à des changements de propriétés visco-élastiques de l'interface plus importants. Il est déjà à constater que le nombre de Marangoni du C<sub>12</sub>TAB est au moins deux fois supérieur à celui du SDS (0,9 contre 0,28-0,45 respectivement, voir Table I.1). Ce nombre adimensionnel est le rapport du coefficient élastique et de la tension de surface d'équilibre, et traduit la force visco-élastique induite par la présence des molécules à l'interface. Dravid *et al.* [25] et TIMMERMANS & LISTER

[87] ont montré que pour un écoulement gravitaire d'un jet liquide, l'ajout d'un tensioactif caractérisé par un nombre de Marangoni supérieur à 0,45-0,5 induit un effet Marangoni à l'interface du jet, ce à condition que l'adsorption soit suffisamment lente pour laisser apparaître un gradient axial de concentration surfacique. Les modules élastiques de Gibbs obtenus dans la littérature (cf. III.1.2) sont cependant peu consistants et ne permettent pas d'approfondir cette interrogation.

### III.3.2 Effets des tensioactifs sur l'angle d'ouverture du jet liquide et sur l'angle de spray

Cette section permet d'apprécier l'évolution des angles d'ouverture du jet liquide et du spray. La Figure III.33 rappelle la méthode de mesure de ces deux grandeurs. L'angle de jet est calculé comme le demi-angle formé entre la sortie de l'injecteur liquide et les déplacements radiaux maximaux au cours du temps du jet liquide au niveau de la longueur d'établissement du *flapping* ( $L_F$ , cf. II.2). Environ 2% des plus grandes amplitudes mesurées sont le plus souvent des structures liquides arrachées mais encore proches du jet, vues après binarisation de l'image comme encore rattachées à ce dernier. C'est pourquoi ces cas particuliers ne sont pas pris en compte dans les statistiques. L'angle de spray est calculé par la même méthode, mais est évalué à partir des amplitudes maximales mesurées entre la longueur d'établissement du *flapping* et la longueur de brisure. Les essais de reproductibilité des mesures de l'angle de jet en eau pure ont montré des écarts de 5 à 14% entre les quatre séries de mesures, pour  $U_L=0,14$  m/s et  $U_G$  varié de 24 à 58 m/s. Celles de l'angle de spray des écarts de 1 à 15% dans les mêmes conditions. Un ordre de grandeur significatif de 10% pour l'incertitude sera donc pris en compte dans la lecture des mesures de l'angle de jet qui suivent, de 15% pour l'angle de spray.

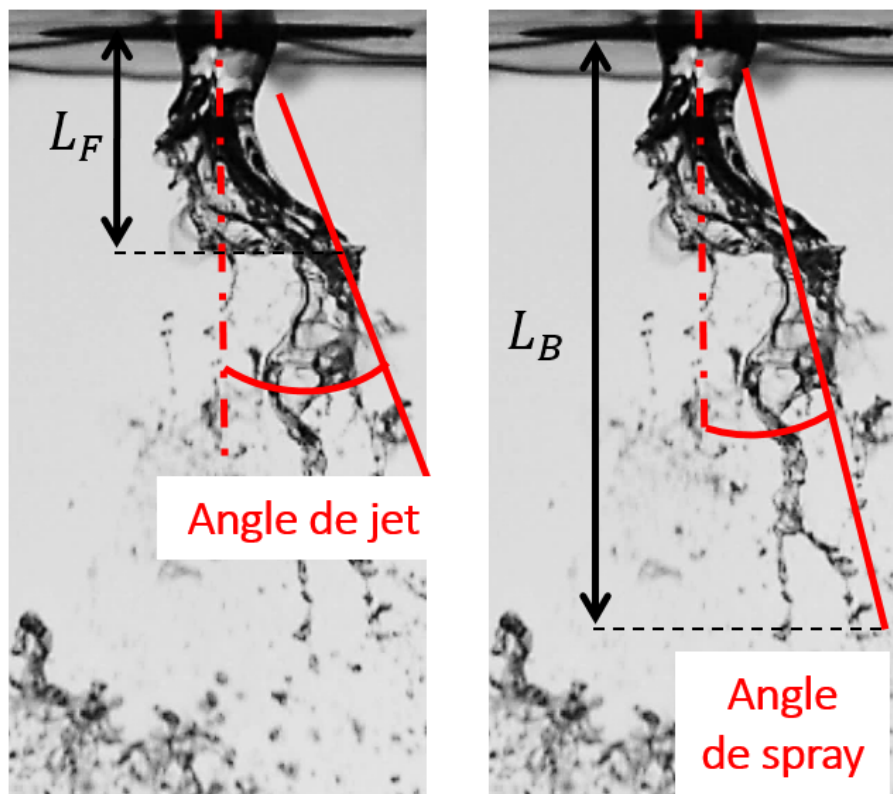


FIGURE III.33 – Illustrations des méthodes de mesure de l'angle de jet (gauche) et de l'angle de spray (droite).  $L_F$  est la longueur d'établissement du *flapping*, à laquelle l'amplitude radiale de déplacement du jet est supérieure au rayon de l'injecteur liquide (cf. section II.2).  $L_B$  est la longueur de brisure.

### III.3.2.1 Évolution de l'angle de jet avec les paramètres d'injection, en eau seule

La Figure III.34 permet d'apprécier le comportement de l'angle de jet avec les vitesses liquide et gaz en eau seule. L'angle décroît avec la vitesse liquide au delà de 0,2 m/s. Il augmente avec la vitesse gaz jusqu'à 25 m/s puis diminue. Ce comportement avec la vitesse gaz a déjà été observé par Leroux *et al.* [52] et Delon [22] en configuration coaxiale, respectivement sans et avec *flapping*.

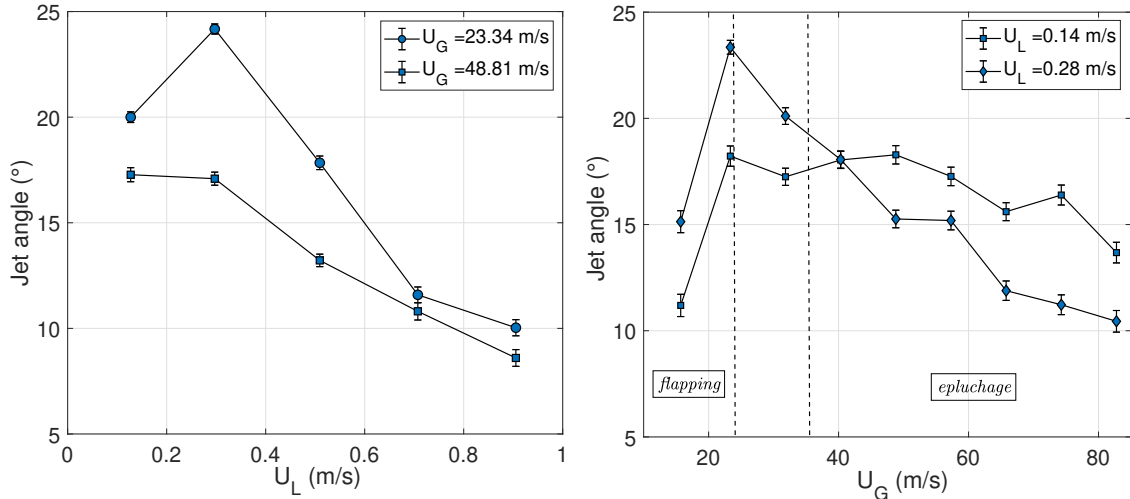


FIGURE III.34 – Évolution de l'angle de jet moyen avec les vitesses liquide (gauche) et gaz (droite) pour de l'eau pure seule. Les droites verticales délimitent les mécanismes qui pilotent l'angle de jet : *flapping* à basse vitesse gaz, *épluchage* à fort  $U_G$ .

### III.3.2.2 Évolution de l'angle de jet avec ajout de tensioactifs

Les mesures de l'angle de jet avec ajout d'agents de surface sont présentées sur la Figure III.35. Tout d'abord, nous pouvons noter pour l'ensemble des mesures que le dopage ne change globalement pas le comportement de l'angle de jet avec  $U_G$ . Nous commentons les effets observés par molécule ci-dessous :

- Pour la vitesse liquide  $U_L=0,14$  m/s, les différences entre les concentrations de SDS (Figure III.35, haut) sont peu significatives. Lorsque  $U_L=0,28$  m/s, l'angle de jet diminue avec la concentration de l'ordre de 15% pour  $U_G>40$  m/s.
- Concernant le  $C_{12}TAB$  (Figure III.35, milieu), l'effet de la concentration est uniforme sur toute la plage des vitesses gaz. L'angle augmente de l'ordre de 20% à faible vitesse gaz ( $U_G=15$  m/s). Au delà, l'angle diminue de 10 à 41%, d'autant plus fortement que la concentration est élevée. Nous constatons des variations de l'angle de jet pour  $U_G=15$  m/s différentes des autres vitesses gaz. Il est sans doute possible d'attribuer cela au changement de mode de brisure observé à cette vitesse gaz, d'un type Rayleigh-Plateau en eau seule à brisure membrane avec  $C_{12}TAB$  (pour  $c=1$  et  $2.cmc$ , cf. section III.2.0.1). La Figure III.36 fournit par ailleurs l'évolution de l'angle de jet avec la vitesse liquide, dont nous pouvons observer qu'elle décroît avec ou sans tensioactif. Ici aussi, l'angle moyen est réduit significativement par le  $C_{12}TAB$  au delà de  $U_L=0,2$  m/s, de 7 à 40%.
- Quant au  $C_{16}TAB$  (Figure III.35, bas), l'écart des mesures en eau seule avec  $C_{16}TAB$  n'est pas significatif. Excepté pour  $U_G=15$  m/s,  $U_L=0,14$  m/s où la valeur de l'angle est réduite de 20%.

Ces résultats indiquent que le C<sub>12</sub>TAB réduit l'oscillation radiale du jet - et donc l'amplitude de *flapping* -, pour des vitesses gaz supérieures à une valeur critique de 30 m/s et des concentrations supérieures à la CMC. C'est également le cas du SDS pour les mesures à U<sub>L</sub>=0,28 m/s fixé.

Si ces résultats caractérisent l'amplitude radiale du jet à une distance axiale particulière (la zone où démarre le *flapping*), nous souhaitons savoir ce qu'il en est depuis la sortie de l'injecteur jusqu'à la distance de brisure du jet liquide. Dans ce but, la Figure III.37 présente spécifiquement l'évolution de l'amplitude de déplacement radial du jet liquide avec la distance axiale à l'injecteur, pour quelques mesures avec C<sub>12</sub>TAB et SDS. Trois couples de vitesses sont ici présentés, pour lesquels une forte influence du dopage sur l'angle de jet a été observée. En premier lieu, l'on constate que le déplacement radial du jet croît avec la distance à l'injecteur avec et sans tensioactif. Ensuite, le déplacement radial maximal du jet est toujours moindre avec C<sub>12</sub>TAB et SDS jusqu'à la distance moyenne de brisure du jet (symbolisée par une étoile), excepté pour le SDS à faibles concentrations qui présente des amplitudes légèrement plus grandes qu'avec eau pure proche injecteur ( $z < 10$  mm).

Pour la plus faible vitesse gaz U<sub>G</sub>=24 m/s (a-b) - où l'angle de jet augmente jusqu'à 20% à fortes concentrations de C<sub>12</sub>TAB et SDS (Figure III.35a-b) -, l'amplitude radiale du jet est moindre avec tensioactif jusqu'à la longueur de brisure moyenne. Au delà, les amplitudes surpassent celles en eau pure. Pour les vitesses gaz supérieures (c-f), l'amplitude est d'autant plus réduite que la concentration est importante. Une diminution de l'angle de jet jusqu'à 40% a été obtenue dans ces conditions. Ces résultats confirment que C<sub>12</sub>TAB et SDS réduisent l'amplitude d'oscillation du *flapping*, depuis la sortie de l'injecteur jusqu'à la longueur de brisure moyenne du jet.



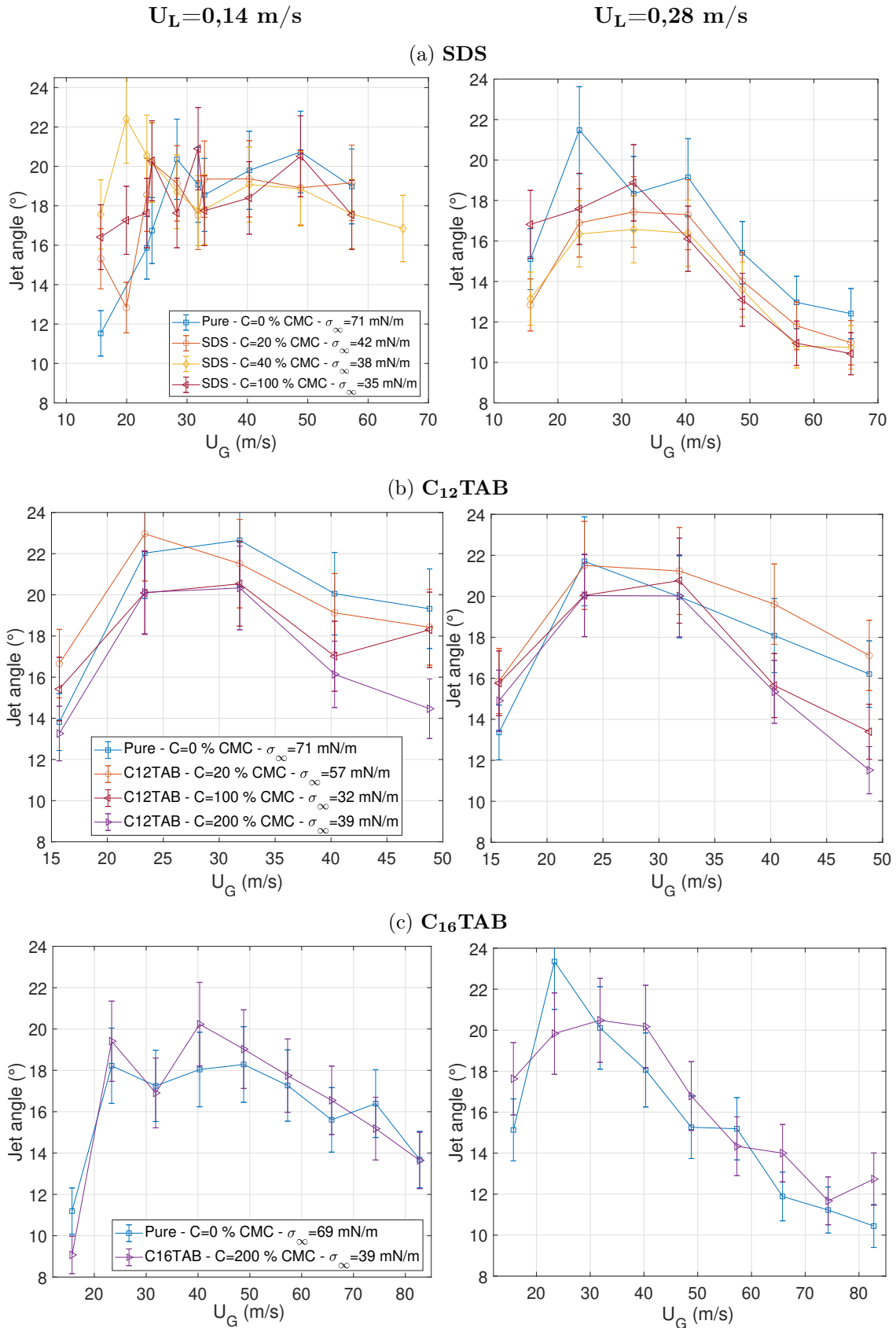


FIGURE III.35 – Évolution de l'angle de jet moyen avec la vitesse gaz pour différentes concentrations de SDS (a), C<sub>12</sub>TAB (b) et C<sub>16</sub>TAB (c).  $U_L=0,14$  m/s (gauche) et  $U_L=0,28$  m/s (droite). Les barres verticales représentent l'incertitude sur la grandeur mesurée, d'après les essais de reproductibilité (cf. section II.3). Les plages des abscisses ne sont pas uniformes, contrairement aux plages des ordonnées.

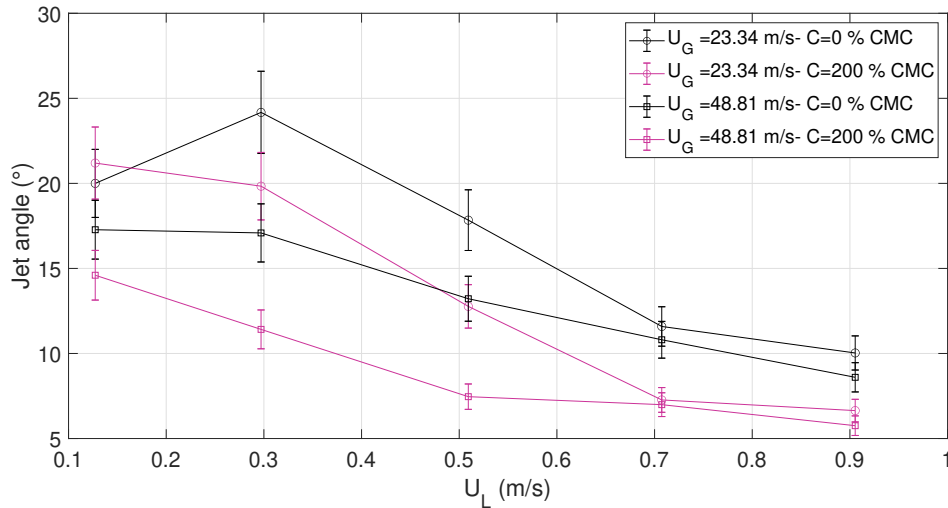


FIGURE III.36 – Évolution de l'angle de jet moyen avec la vitesse liquide pour du  $C_{12}TAB$  (2.CMC) et de l'eau pure seule. Les barres verticales représentent l'incertitude sur la grandeur mesurée.

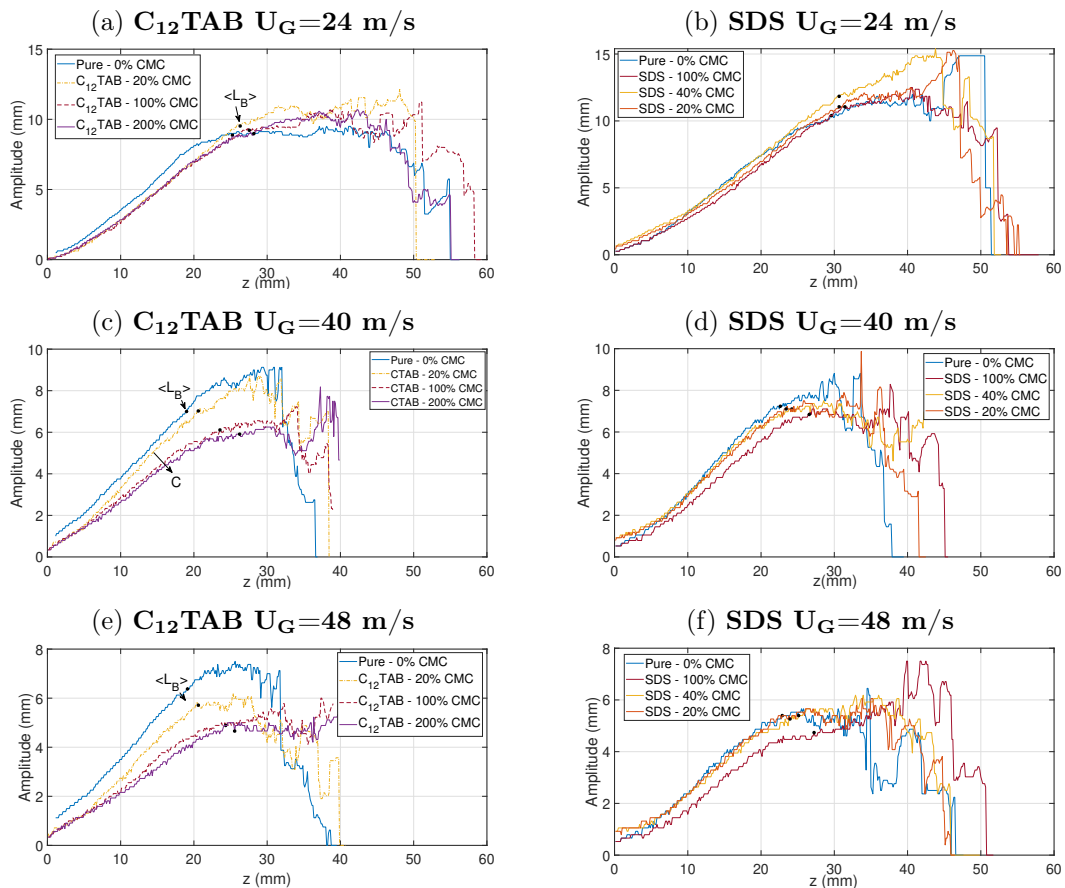


FIGURE III.37 – Déplacement maximal du centre du jet liquide avec la distance à l'injecteur  $z$ , pour différentes concentrations de  $C_{12}TAB$  et SDS, et différentes vitesses gaz. Vitesse liquide fixée à  $U_L=0,28$  m/s. 2% des plus grands évènements ont été supprimés. Les étoiles (en noir) indiquent la longueur de brisure moyenne. Les courbes correspondant à l'eau pure ne démarrent pas toujours de zéro (correspondant à la sortie de l'injecteur), du fait de légères vibrations de l'injecteur liquide rendant impossible la détection du jet liquide après binarisation des images, ce jusqu'à 2 mm en dessous de l'injecteur.

### III.3.2.3 Évolution de l'angle de spray avec les paramètres d'injection, en eau seule

La Figure III.38 rend compte du comportement de l'angle de spray avec les vitesses liquide et gaz. De façon similaire à l'angle de jet, l'angle de spray diminue avec la vitesse liquide. Avec la vitesse gaz, il augmente jusqu'à  $U_G=20$  m/s puis diminue.

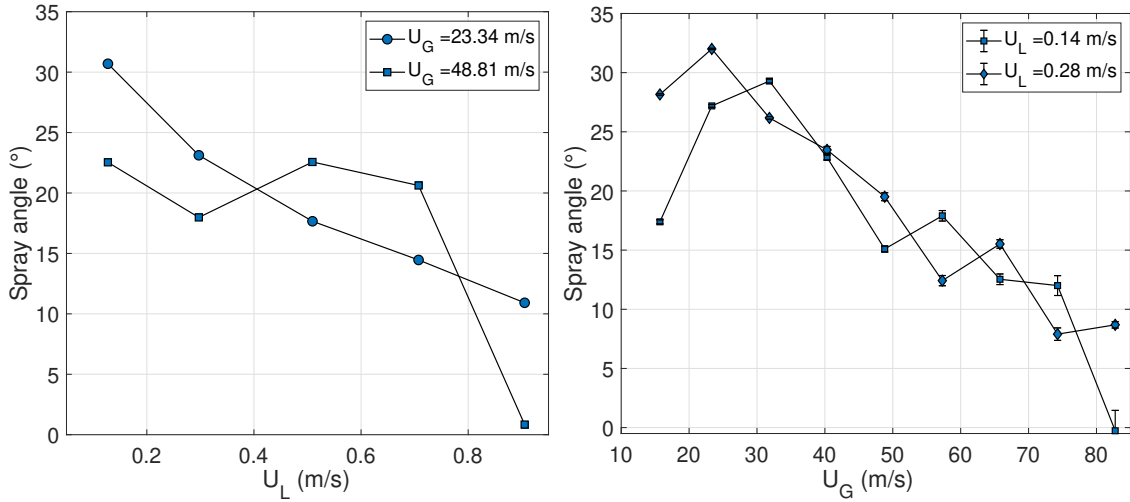


FIGURE III.38 – Évolution de l'angle de spray moyen avec les vitesses liquide (gauche) et gaz (droite) pour de l'eau pure seule.

### III.3.2.4 Évolution de l'angle de spray avec ajout de tensioactifs

La Figure III.39 expose maintenant les mesures d'angle de spray en fonction de la vitesse gaz pour les différents tensioactifs :

- Pour le SDS (a) et lorsque  $U_L$  est fixé à 0,14 m/s, seule une augmentation significative de l'angle à  $U_G=15$  m/s peut être mise en évidence. Pour  $U_L=0,28$  m/s et  $U_G>50$  m/s, l'angle diminue jusqu'à 60% à  $c=100\%$  cmc.
- Les résultats du  $C_{12}TAB$  (b) pour  $U_L=0,14$  m/s montrent une augmentation de l'angle de spray à faible  $U_G$ , puis une zone de transition ( $U_G=20-35$  m/s), suivie d'une réduction importante de 20 à 64% selon la concentration. Puis lorsque la vitesse liquide est doublée ( $U_L=0,28$  m/s), une tendance similaire se dégage à faible vitesse gaz ( $U_G<25$  m/s). Au delà, seule une diminution significative de l'angle à deux fois la cmc est notable.

L'angle de spray en fonction de la vitesse liquide avec ajout de  $C_{12}TAB$  est ensuite décrit par la Figure III.40. Pour la plus faible vitesse gaz  $U_G=23$  m/s, l'angle diminue de 12 à 40% avec dopage. A plus forte vitesse gaz  $U_G=49$  m/s, cette réduction a également lieu sur l'ensemble de la gamme de vitesses liquides. L'effet particulier observable avec  $C_{12}TAB$  est un angle presque nul sur la plage  $U_L=0,5-0,9$  m/s. Autrement dit, le spray formé au niveau de la brisure du jet reste dans l'axe de l'écoulement pour ces couples de vitesses, ce qui peut être constaté avec une image de l'écoulement (Figure III.41).

- Finalement, l'angle de spray est significativement réduit avec  $C_{16}TAB$  (c), mais uniquement pour des vitesses gaz supérieures à 40 m/s et  $U_L=0,28$  m/s (de l'ordre de 10 à 60%).

Cependant, la reproductibilité de la mesure de l'angle de spray semble peu fiable. Les

différentes séries de mesures en eau pure (Figure III.39, a-c) présentent des valeurs très variables à vitesses liquide et gaz identiques.

### III.3.2.5 Effets des tensioactifs sur les angles de jet et de spray : conclusion

L'évolution des angles de jet et de spray présente donc pour l'ensemble des mesures une évolution croissante avec  $U_G$  sur la plage 15-35 m/s suivie d'une zone de décroissance au delà de 40 m/s. Cependant, la reproductibilité de ces mesures présente des variations non négligeables, de l'ordre de 10 et 15% pour les angles de jet et de spray respectivement (cf. section II.3, Figure ??).

Le même comportement a toutefois été constaté par Delon [22] dans la même configuration géométrique et pour une vitesse liquide  $U_L=0,28$  m/s. Avec une différence dans la méthode de mesure : l'angle de spray mesuré dans cette étude est l'angle correspondant à l'enveloppe formée par le spray après superposition de toutes les images de l'acquisition. L'auteur a mis en évidence que l'angle de spray évolue selon différents régimes, que l'on retrouve dans nos mesures :

- la zone de croissance avec  $U_G$  correspond à un pilotage de l'angle d'ouverture du spray par le taux de croissance de l'instabilité de *flapping*
- la zone de décroissance correspond à un pilotage par l'épluchage de l'interface du jet...
- ... précédée d'une zone de transition vers  $U_G=40-50$  m/s.

Dans notre cas, cette zone de transition apparaît vers  $U_G=25-35$  m/s avec et sans tensioactif.

En outre, les angles de jet et de spray sont confondus à faible et fort  $U_G$  - jusqu'à 20 m/s et après 80 m/s respectivement -, car les gouttes formées en aval du jet liquide sont projetées dans la direction de l'écoulement. Ce n'est pas le cas entre 20 et 80 m/s. Dans cette zone de vitesses gaz, Raynal [76] a observé qu'une partie des gouttes arrachées forme un angle de  $50^\circ$  avec l'écoulement. Jerome *et al.* [40] ont montré que dans le cas d'un injecteur plan avec pre-filming, ce phénomène s'explique par une recirculation gaz dans le creux aval des vagues formées par l'instabilité de Kelvin-Helmholtz, catapultant les gouttes arrachées avec un fort angle par rapport à la direction de l'écoulement. Un vortex résultant du détachement de la zone de recirculation entraîne l'arrachement de la crête de la vague dans cette direction. Du fait de ces gouttes projetées avec un fort angle, l'angle de spray est plus grand que l'angle de jet. A plus forte vitesse gaz, la recirculation disparaît et les gouttes ont une direction purement axiale, l'angle de jet et l'angle de spray sont alors identiques.

Nous pouvons remarquer que l'ajout de tensioactifs ne modifie pas ce comportement et que les différents régimes (croissance, transition puis décroissance de l'angle de spray) restent les mêmes. Excepté pour le  $C_{12}TAB$  concentré à 200% CMC et  $U_L=0,28$  m/s (Figure III.39). SDS et  $C_{12}TAB$  induisent des variations très importantes des angles de jet et de spray, le plus souvent à forte concentration. Les concentrations faibles (20% CMC) peuvent elles aussi générer pour certaines vitesses liquides des variations d'angles plus importantes encore qu'aux fortes concentrations. Cela peut être expliqué par des changements de régime de brisure à forte concentration, comme montré précédemment en section III.2.0.1.

Pour des concentrations de Tergitol NP-10 de 1,5 à 6 mM ajoutées à la phase liquide d'un injecteur co-axial de géométrie  $H_L=0,89$  mm et  $H_G=4,6$  mm, et des vitesses d'injection  $U_L=1,28$  m/s et  $U_G=30$  m/s, Shavit & Chigier [79] ont mesuré une augmentation de l'amplitude de *flapping* jusqu'à 50% avec la concentration, mais aussi avec la distance axiale à l'injecteur. Mais lorsque  $U_G$  est augmenté à 40 m/s, les auteurs n'observent plus d'effet significatif du Tergitol NP-10. Ils attribuent l'effet des tensioactifs sur le *flapping* à une réduction de la tension de surface uniquement. Lorsque la vitesse gaz est augmentée,

les forces aérodynamiques dominant les forces capillaires et le tensioactif n'a plus d'impact significatif. Cependant et comme souligné par les auteurs, l'étude est limitée à une variation de deux vitesses gaz sur une courte plage (de 30 et 40 m/s), et un seul tensioactif a été utilisé.

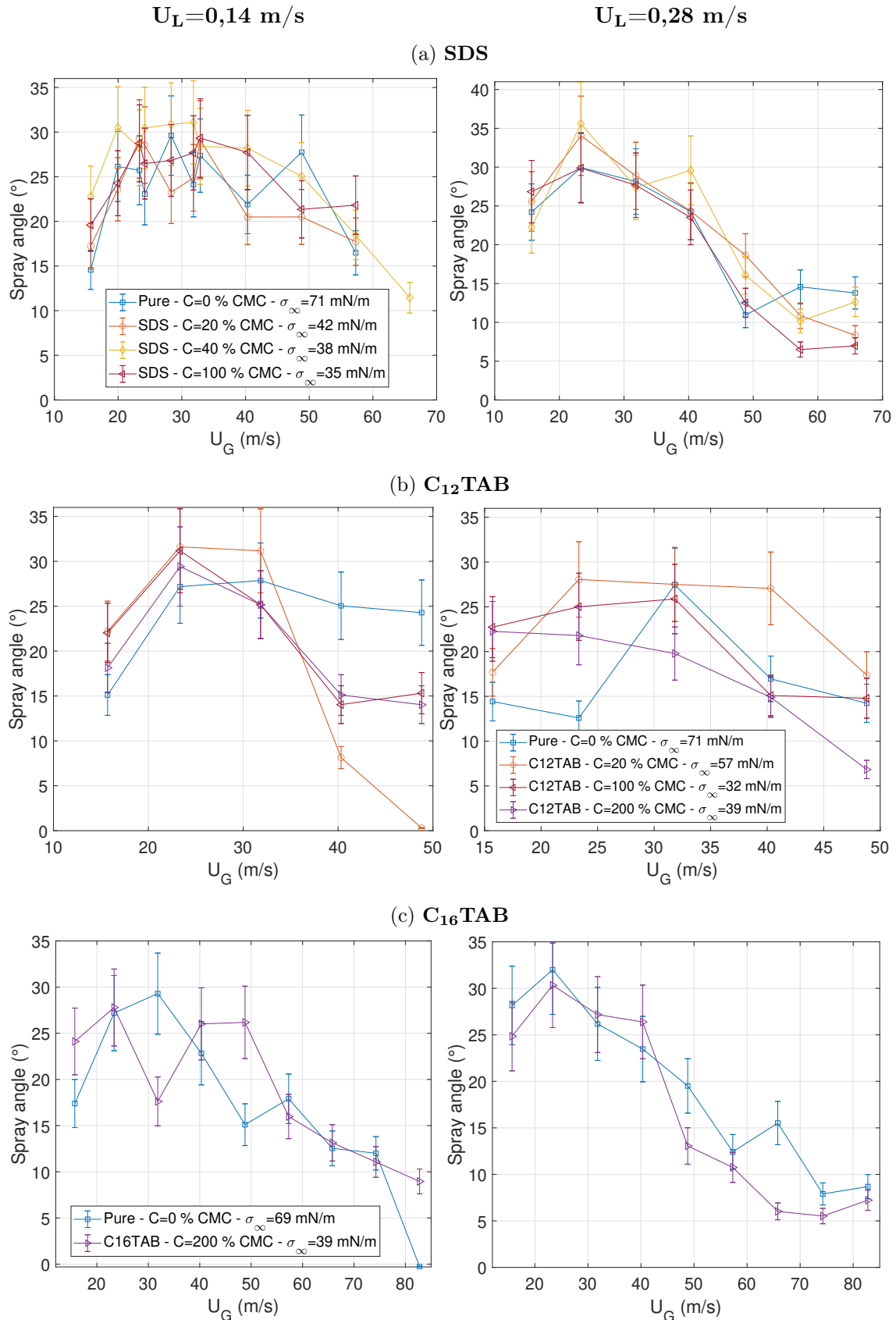


FIGURE III.39 – Évolution de l'angle de spray moyen avec la vitesse gaz pour différentes concentrations de SDS (a), C<sub>12</sub>TAB (b) et C<sub>16</sub>TAB (c).  $U_L=0,14$  m/s (gauche) et  $U_L=0,28$  m/s (droite). Les barres verticales représentent l'incertitude sur la grandeur mesurée, d'après les essais de reproductibilité (cf. section II.3. Les plages des abscisses ne sont pas uniformes, contrairement aux plages des ordonnées.

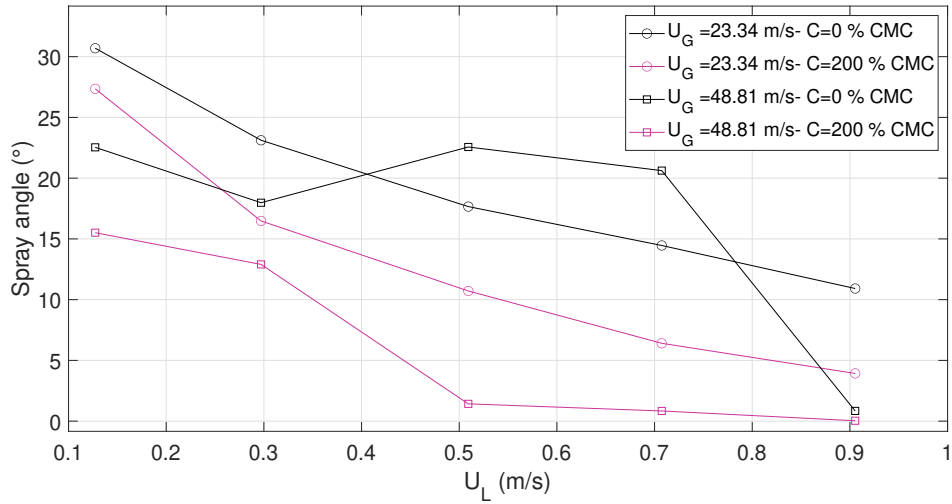


FIGURE III.40 – Évolution de l'angle de spray moyen avec la vitesse liquide pour du  $C_{12}TAB$  (2.CMC) et de l'eau pure seule,  $U_G=0,14$  m/s et  $0,28$  m/s. Les barres verticales représentent l'erreur sur la grandeur mesurée.

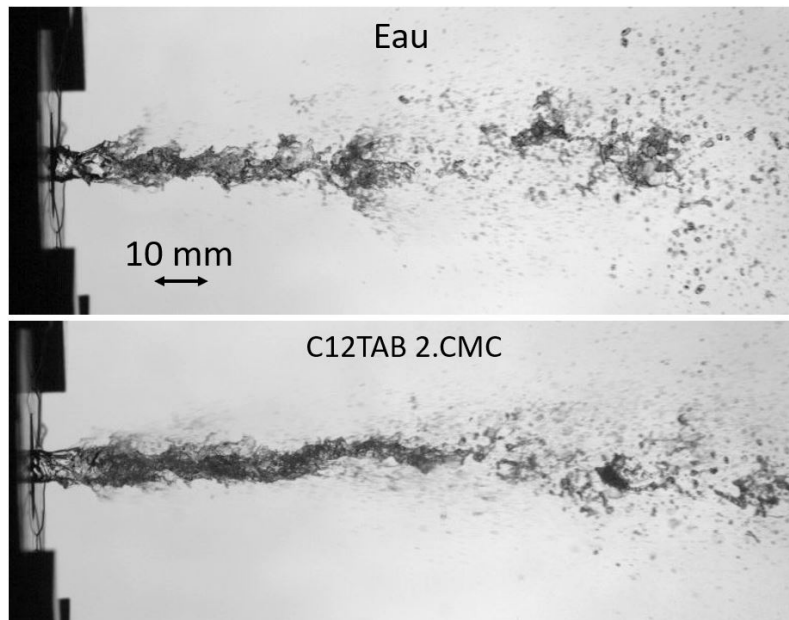


FIGURE III.41 – Image de l'écoulement pour le couple de vitesses ( $U_L=0,9$  m/s,  $U_G=49$  m/s) auquel un angle de spray très faible a été mesuré avec ajout de  $C_{12}TAB$  (2.CMC) (cf. Figure III.40). Eau pure (haut),  $C_{12}TAB$  c=2.cmc (bas).

### III.3.3 Effets des tensioactifs sur les longueurs de dard liquide et d'établissement du *flapping*

La longueur intacte  $L_D$  est la région spatiale toujours liquide au cours du temps. La longueur d'établissement de *flapping*  $L_F$  est la distance axiale à laquelle l'amplitude de déplacement radial du jet liquide devient supérieure au rayon de l'injecteur liquide. Étant donné les évolutions très similaires des deux grandeurs, nous choisissons de les inclure ensemble dans cette section.

#### III.3.3.1 Évolution des longueurs de dard liquide et d'établissement du *flapping* avec les paramètres d'injection en eau pure

Les Figures III.42 et III.43 donnent à voir respectivement les évolutions de la longueur de dard et de la longueur d'établissement du *flapping*, en eau seule et en fonction des vitesses d'injection. Nous rappelons que les essais de reproductibilité de  $L_D$  et  $L_F$  mettaient en évidence des incertitudes sur la mesure jusqu'à 20 et 10% respectivement. Le premier constat est le comportement identique des deux grandeurs mesurées avec les paramètres de contrôle. En outre, une évolution asymptotique avec la vitesse gaz, tant de la longueur de dard que de la longueur d'établissement du *flapping*, avait déjà été observée par Delon [22], à géométrie identique et  $U_L=0,28$  m/s. Ce comportement est retrouvé pour  $U_L=0,14$  m/s, mais ce n'est pas le cas à  $U_L=0,28$  m/s où  $L_I$  et  $L_F$  augmentent légèrement au delà de  $U_G=40$  m/s.

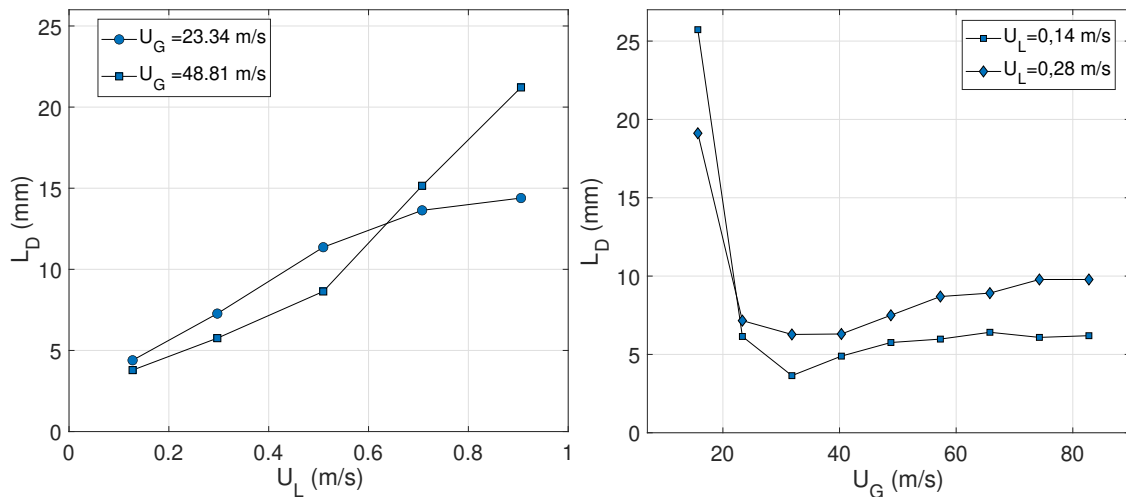


FIGURE III.42 – Évolution de la longueur de dard avec les vitesses gaz (gauche) et liquide (droite) pour de l'eau pure seule.

#### III.3.3.2 Évolution des longueurs de dard liquide et d'établissement de *flapping* avec ajout de tensioactifs

Les Figures III.44 et III.45 présentent maintenant l'évolution de  $L_F$  avec les vitesses gaz et liquide respectivement, et ajout de tensioactifs. Les Figures III.46 et III.47 montrent l'évolution de  $L_D$  avec les mêmes paramètres.

Le premier constat est l'effet important du  $C_{12}TAB$  sur les deux grandeurs, et l'effet moindre du SDS et du  $C_{16}TAB$ . En particulier :

- A vitesse liquide fixée  $U_L=0,14$  m/s, le SDS ne fait pas varier significativement  $L_F$  et  $L_D$  (Figures III.44a et III.46a). Seule une diminution de  $L_F$  de l'ordre de 30% est notable à  $U_G=15$  m/s pour les concentrations de 40 et 100% cmc. Lorsque  $U_L=0,28$  m/s, les deux grandeurs sont également plus faibles pour  $U_G=15$  m/s et à forte concentration. Puis  $L_F$  croît de l'ordre de 30% au delà de 30 m/s,  $L_D$  de 20%.



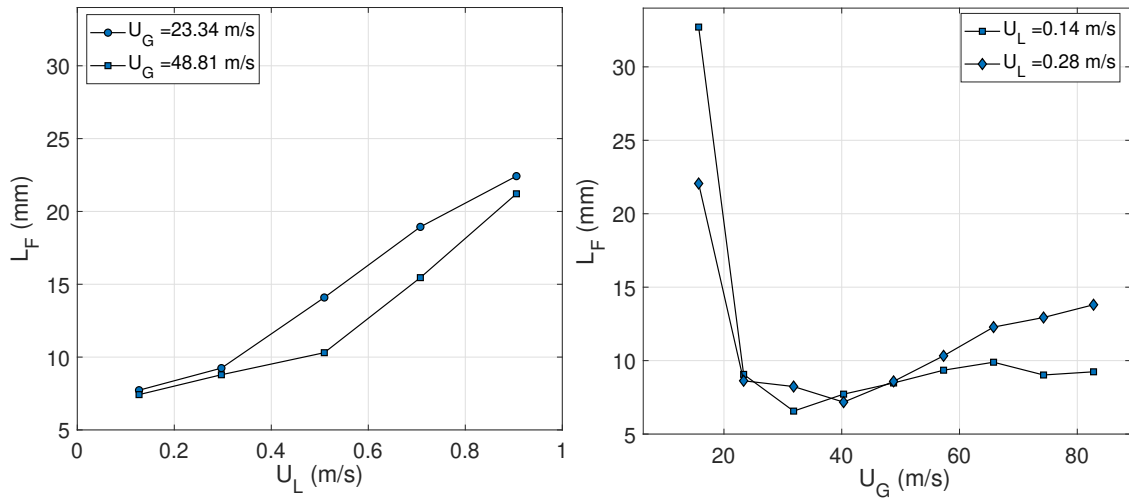


FIGURE III.43 – Évolution de la longueur d'établissement de *flapping* avec les vitesses gaz (gauche) et liquide (droite) pour de l'eau pure seule.

- Le *flapping* débute d'autant plus loin de l'injecteur que la concentration en  $C_{12}TAB$  augmente (b), de façon similaire à ce qui a été observé pour la longueur de brisure moyenne. Comparée à l'eau seule, la distance augmente de 35 à 100%. Les Figures III.47 et III.45 indiquent les comportements de  $L_D$  et  $L_F$  respectivement avec la vitesse liquide. L'effet du tensioactif  $C_{12}TAB$  à 200% CMC n'est pas significatif sur les deux grandeurs à faible  $U_L$  et pour la plus faible vitesse gaz  $U_G = 23,3$  m/s, mais est important lorsque  $U_L$  et  $U_G$  augmentent. Pour  $U_L = 0,9$  m/s et  $U_G = 48,8$  m/s notamment,  $L_F$  et  $L_D$  sont tous deux accrus de 60%. Les images de la superposition des jets liquides - permettant d'obtenir le dard liquide - sont proposées pour ce couple de vitesses en Figure III.48. Il semble donc que l'effet du  $C_{12}TAB$  soit d'autant plus important sur  $L_D$  et  $L_F$  que les vitesses d'injection sont grandes.
- Les variations avec ajout de  $C_{16}TAB$  (c) sont faibles, excepté pour  $U_G = 15$  m/s où les grandeurs sont réduites pour les deux vitesses liquides.

Les deux grandeurs semblent donc évoluer de façon identique, tant en eau seule avec les vitesses d'injection (Figures III.42 et III.43) qu'avec ajout de tensioactif. Ce lien a été mis en évidence par Delon [22] également. La longueur d'établissement du *flapping* définit la distance à laquelle le déplacement radial du jet est supérieur au rayon de l'injecteur liquide. Or,  $L_D$  dépend au premier ordre de l'amplitude de déplacement radial du jet [22], comme l'attestent les évolutions identiques de  $L_D$  et  $L_F$ . La cause secondaire régissant la longueur de dard est due à l'affinement du jet liquide par plusieurs mécanismes : le taux de croissance de l'instabilité de cisaillement, l'étirement du jet par gravité et donc la réduction du diamètre avec la distance axiale, et l'épluchage du jet conduisant à une perte de masse fluide en aval. La contribution de chacun de ces mécanismes varie avec la vitesse gaz [22]. En comparant les mesures de  $L_D$  obtenues avec un diamètre d'injecteur liquide de 5 mm, aux mesures de  $L_F$  obtenues avec un diamètre inférieur (3,5 mm), Delon [22] trouve  $L_D \approx L_F$ , ce qui montre que la longueur de dard liquide est contrôlée principalement par l'amplitude radiale du jet et au second ordre par la réduction de son rayon avec la distance axiale.

Autrement dit - de façon simplifiée -, la longueur de dard dépend de la distance d'établissement du *flapping* : en amont de la distance moyenne d'établissement du *flapping*, le jet liquide reste aligné avec l'injecteur liquide (par définition). Ainsi, une plus grande longueur d'établissement du *flapping* crée une zone toujours liquide au cours du temps de plus grande envergure. Nous avons vu dans les sections précédentes que le  $C_{12}TAB$  réduit l'oscillation radiale du jet, ce qui conduit donc à un allongement des longueurs de

dard et de brisure moyennes. C'est ce que l'on peut observer par exemple sur les images comparatives des longueurs de dard avec et sans dopage (Figure III.48).

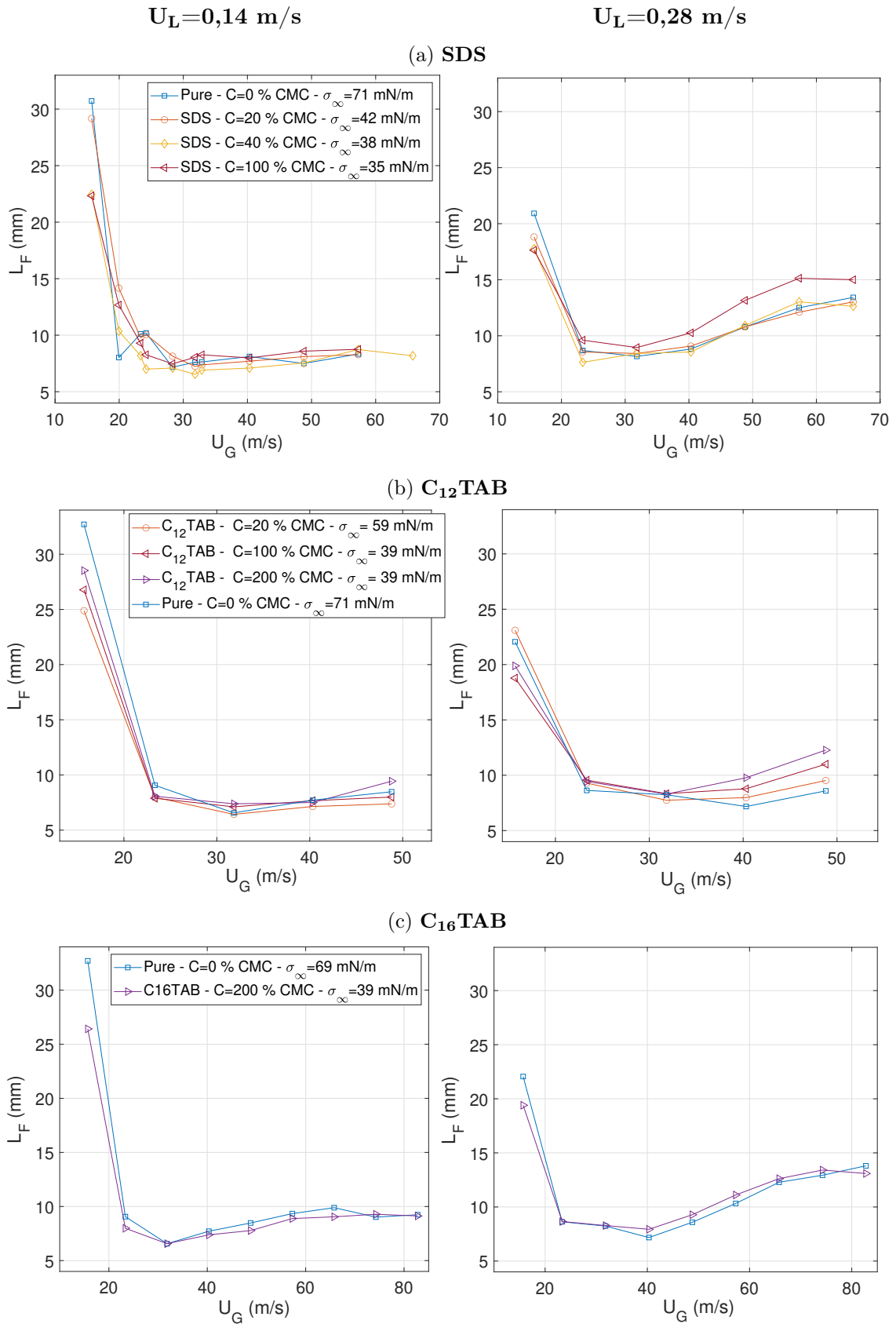


FIGURE III.44 – Évolution de la longueur d'établissement de *flapping* avec la vitesse gaz pour différentes concentrations de SDS (a), C<sub>12</sub>TAB (b) et C<sub>16</sub>TAB (c).  $U_L=0,14$  m/s (gauche) et  $U_L=0,28$  m/s (droite). Les plages des ordonnées sont uniformes entre les figures, pas celles des abscisses.

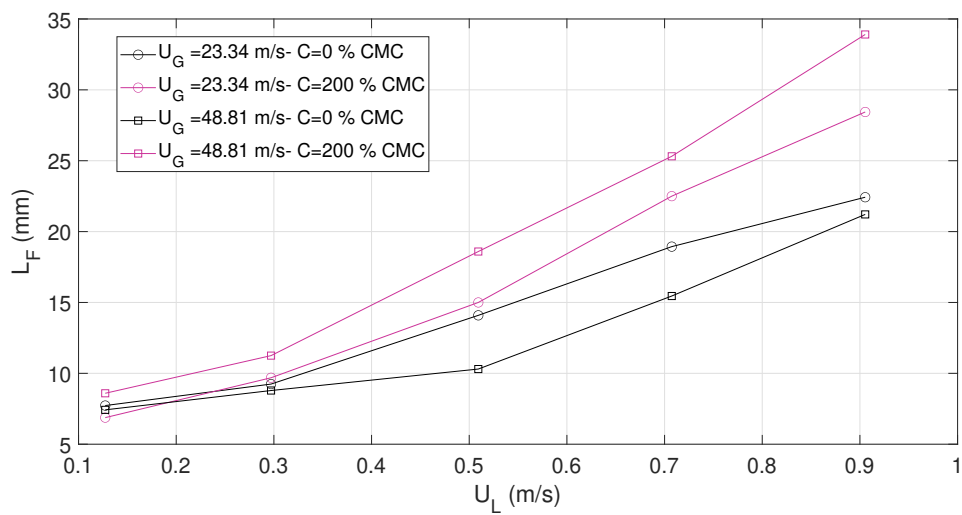


FIGURE III.45 – Évolution de la longueur d'établissement de *flapping* avec la vitesse liquide pour le C<sub>12</sub>TAB (2.CMC) et de l'eau pure seule.  $U_G=0,14$  m/s et  $0,28$  m/s.

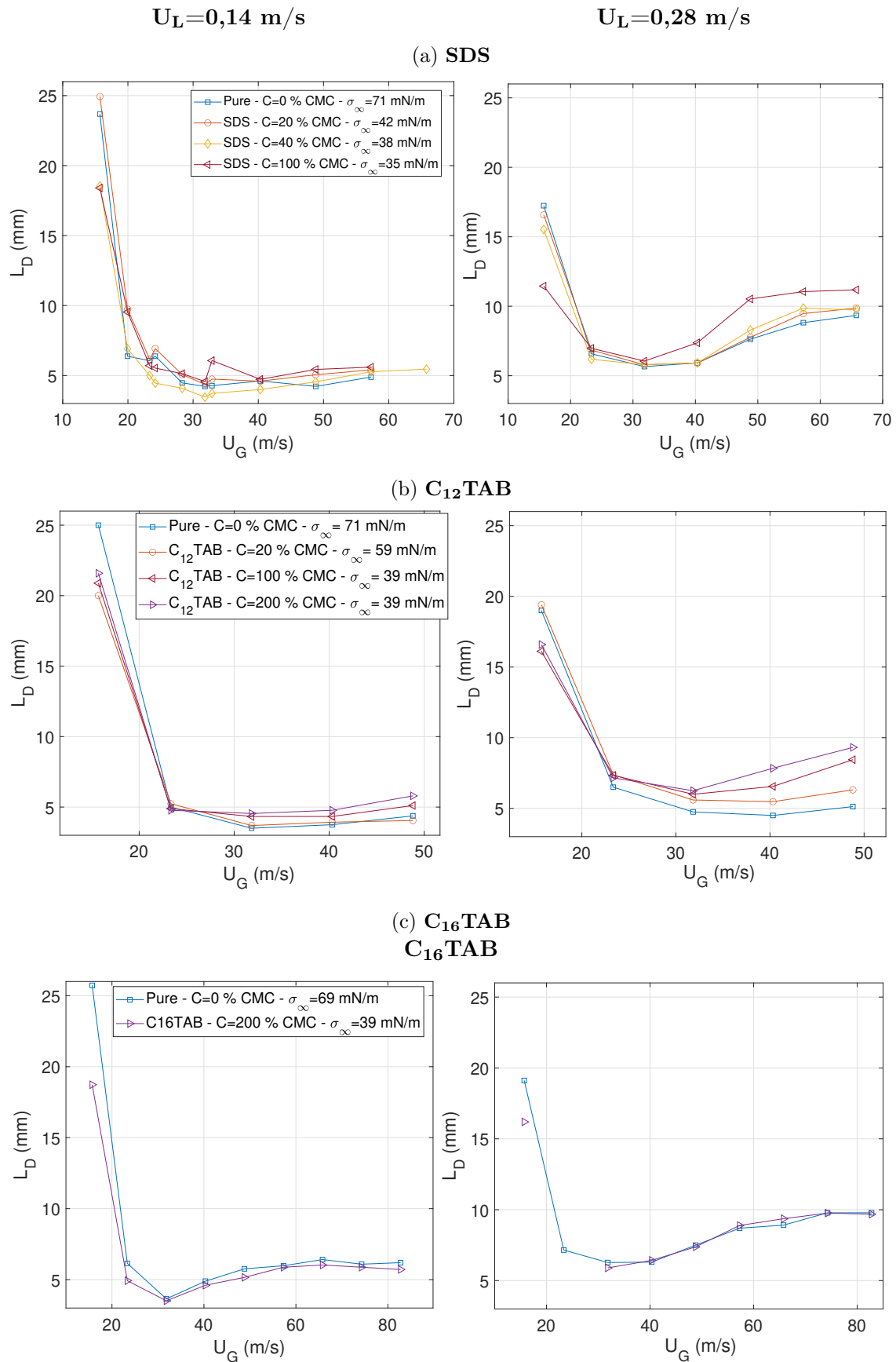


FIGURE III.46 – Évolution de la longueur de dard avec la vitesse gaz pour différentes concentrations de SDS (a), C<sub>12</sub>TAB (b) et C<sub>16</sub>TAB (c).  $U_L=0,14$  m/s (gauche) et  $U_L=0,28$  m/s (droite). Les plages des ordonnées sont uniformes entre les figures, pas celles des abscisses.

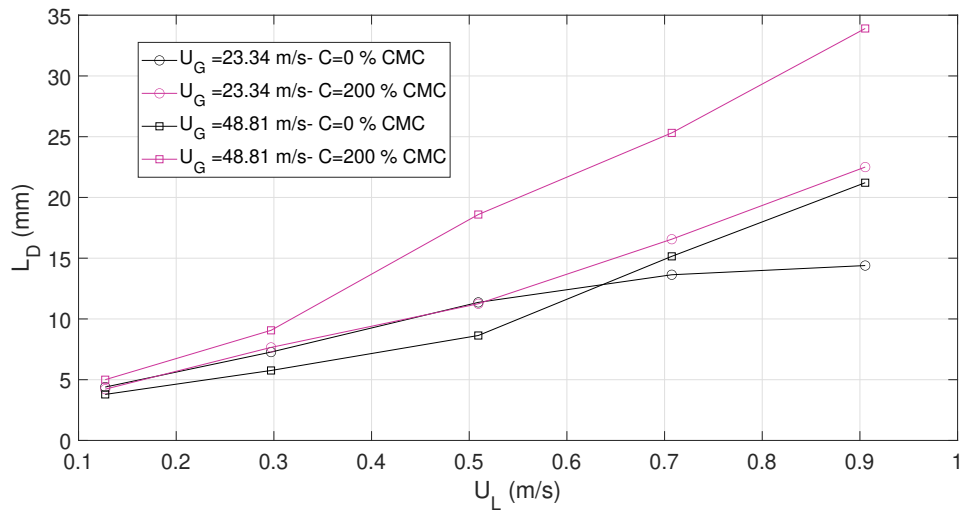


FIGURE III.47 – Évolution de la longueur de dard avec la vitesse liquide pour le  $C_{12}TAB$  (2.CMC) et de l'eau pure seule.  $U_G=0,14$  m/s et 0,28 m/s.

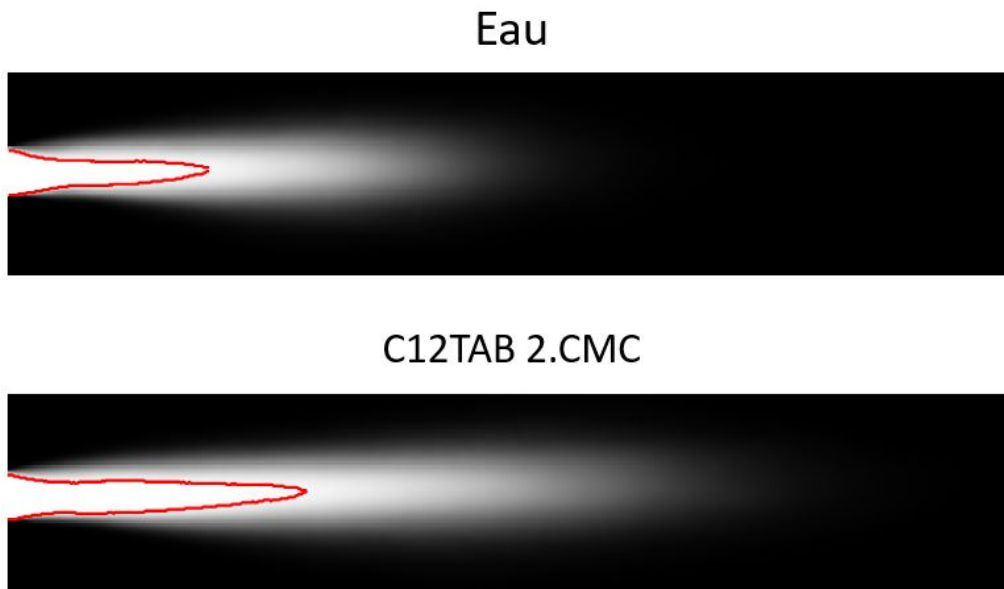


FIGURE III.48 – Images traitées et superposées des longueurs de dard mesurées pour le couple de vitesses ( $U_L=0,9$  m/s,  $U_G=49$  m/s) (identique aux images du jet de la Figure III.41). Eau pure (haut),  $C_{12}TAB$   $c=2.cmc$  (bas).

Nous comparons maintenant les valeurs de la longueur de dard mesurées à deux modèles. Le premier est celui proposé par Arai [3] en configuration plane, où la longueur de dard dépend du nombre de Weber aérodynamique et du Reynolds liquide :

$$\frac{L_D}{a} = 3,88 (a/a_1)^{-1/2} We_a^{-1/2} Re_L^{0,6} \quad (\text{III.10})$$

avec  $a$  l'épaisseur de nappe liquide en sortie d'injecteur,  $a_1=2.10^{-4}$  mm,  $We_a=a\rho_G(U_G-U_L)^2/\sigma$  et  $Re_L=2aU_L/\nu_L$ . La configuration expérimentale étant très différente de la notre, une recherche du coefficient de proportionnalité  $a_1$  est réalisée par la méthode des moindres carrés - à partir des données expérimentales obtenues en eau pure et avec  $C_{12}TAB$  -, et donne  $a_1=1,7.10^{-2}$  mm. La Figure III.49 confronte les valeurs mesurées à celles prédites par le modèle. Une dispersion importante peut être notée, notamment pour les plus grandes longueurs de dard mesurées, supérieures à deux diamètres d'injecteur liquide.

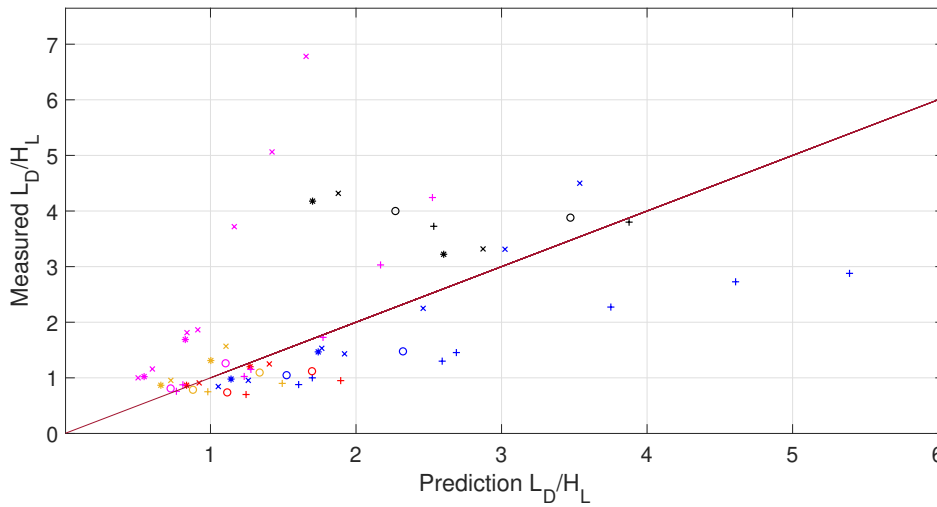


FIGURE III.49 –  $L_D$  mesuré versus  $L_D$  prédit par le modèle proposé par Arai [3] (équation III.10, avec  $a_1=1,7.10^{-2}$  mm) et  $a=H_L$ . La ligne rouge représente la fonction affine  $y=x$ . Séries de données avec  $C_{12}TAB$  et eau pure.  $U_G=15,7$  m/s (noir),  $U_G=23,3$  m/s (bleu),  $U_G=31,8$  m/s (rouge),  $U_G=40,3$  m/s (or),  $U_G=48,8$  m/s (magenta). + : Eau pure, o : C=20% CMC, \* C=100% CMC, x C=200% CMC.

Raynal [76], qui a étudié l'atomisation en configuration plane, a confronté ses mesures expérimentales et obtenu un bon accord avec ce modèle (pour une vitesse liquide  $U_L=0,55$  m/s,  $M=1-30$ ). L'auteur a par ailleurs varié la tension de surface du liquide injecté à l'aide de détergents, et pour une tension de surface d'équilibre diminuée jusqu'à 50%, n'a pas mesuré de différence significative de la longueur de dard en eau pure et avec tensioactif. Il en a déduit que la tension de surface n'influence pas la longueur de dard. L'argument qui peut être opposé à ce raisonnement est que l'auteur suppose la tension de surface dans le jet liquide égale à celle du mélange à l'équilibre ( $\sigma=\sigma_\infty$ ). Or, ce n'est pas forcément le cas, comme discuté précédemment (cf. section I.5.1). De plus, les mesures avec  $C_{12}TAB$  montrent une forte influence du tensioactif sur la longueur de dard (Figures III.46 et III.47), ce qui met en évidence l'influence de  $\sigma$  sur cette caractéristique du jet.

Les mesures avec eau pure et  $C_{12}TAB$  sont tout de même confrontées au modèle proposé par Raynal [76] en Figure III.50, dans lequel la longueur de dard ne dépend que du rapport des pressions dynamique et du diamètre liquide en sortie d'injecteur :

$$\frac{L_D}{H_L} = 6M^{-1/2} \quad (\text{III.11})$$

Ici, les prédictions du modèle sont bonnes pour des longueurs de dard inférieures à  $2.H_L$ , mais la dispersion est forte au delà. Des écarts similaires ont été observés par Delon [22].

En fait, ce modèle est valable lorsque l'angle entre l'interface liquide-gaz et la direction de l'écoulement gaz est faible. Les points en Figure ?? éloignés des prédictions du modèles correspondent aux longueurs de dard supérieures à 10 mm, i.e. pour la plus faible vitesse gaz  $U_G=15$  m/s. Dans ce cas, le flapping présente de fortes amplitudes et le jet est très courbé par rapport à la direction de l'écoulement gaz : les valeurs de l'angle de jet sont de l'ordre de  $20^\circ$  (cf. Figure III.34). De plus, il n'y a pas d'épluchage de l'interface pour cette vitesse gaz. Ces deux éléments expliquent que le modèle de Raynal [76] ne fonctionne pas dans ces conditions.

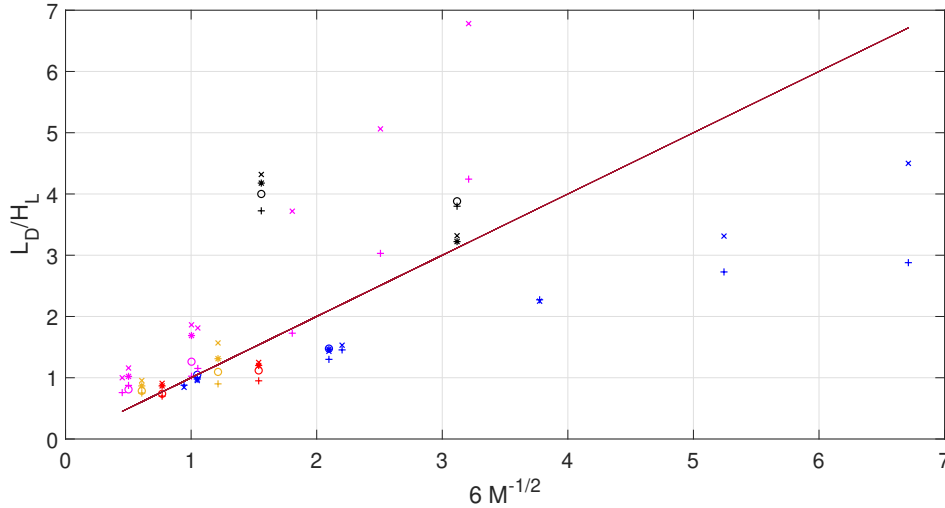


FIGURE III.50 –  $L_D$  mesuré versus  $L_D$  prédit par le modèle proposé par Raynal [76] (équation III.11. La ligne rouge représente la fonction affine  $y=x$ . Séries de données avec  $C_{12}TAB$  et eau pure.  $U_G=15,7$  m/s (noir),  $U_G=23,3$  m/s (bleu),  $U_G=31,8$  m/s (rouge),  $U_G=40,3$  m/s (or),  $U_G=48,8$  m/s (magenta). + : Eau pure, o : C=20% CMC, \* C=100% CMC, x C=200% CMC.

### III.3.4 Conclusion sur la structure du jet

Nous avons vu que le jet se brise à une distance jusqu'à 20% plus grande avec ajout de SDS à 1 cmc, et jusqu'à 35% plus grande pour le  $C_{12}TAB$  à 2 cmc. Le plus fort effet de ce dernier peut être attribué à une plus forte réduction de la tension interfaciale du jet, due à un temps d'adsorption plus court. Au contraire, aucun effet significatif n'est constaté pour le  $C_{16}TAB$ . Un modèle pour la longueur de brisure, proposé par Delon [22], a montré un bon accord avec les résultats expérimentaux. Le  $C_{12}TAB$  présente plusieurs particularités : tout d'abord un changement du régime de brisure à faible vitesse gaz a été mis en évidence avec  $C_{12}TAB$ , transitant d'un mode de brisure Rayleigh-Plateau en eau pure à membrane. Le SDS induit également ce changement de mode mais dans une moindre mesure. Mais ces deux tensioactifs réduisent aussi significativement l'amplitude de *flapping* du jet liquide à mesure que leur concentration augmente.

Enfin concernant la longueur d'établissement du *flapping* et la longueur de dard liquide, SDS et  $C_{12}TAB$  augmentent ces deux grandeurs par rapport au cas en eau seule lorsque la vitesse liquide est suffisamment importante, et ce d'autant plus que la concentration est élevée.



### III.4 Effet des tensioactifs sur les fréquences des instabilités de surface et de *flapping*

Dans cette section sont comparées les mesures des fréquences des instabilités de surface (Kelvin-Helmholtz, ou de cisaillement) et *flapping* avec tensioactif au cas en eau seule. Ces instabilités influencent le processus d'atomisation du jet liquide, avec des contributions plus ou moins importantes selon les vitesses d'injection.

#### III.4.1 Évolution des fréquences d'instabilités en eau seule

Les Figures III.51 et III.52 donnent à voir l'évolution des fréquences de Kelvin-Helmholtz et de *flapping* avec les vitesses gaz et liquide respectivement. Les résultats de Delon [22] sont également affichés : nos mesures sont proches excepté à faible vitesse gaz ( $U_G < 25$  m/s). Nous retrouvons bien une évolution de la fréquence de Kelvin-Helmholtz avec la vitesse gaz de la forme  $U_G^{n=3/2}$ , comme observé dans les travaux passés ([65], [22]). Un ajustement des données de la Figure III.51 donne  $n=1,3$ , proche du facteur  $n=3/2$ . Les mesures de la fréquence de *flapping* avec la vitesse gaz confirment également ce qui a été vu en introduction (voir section I.5.2), à savoir que les conditions d'injection utilisées dans cette étude correspondent à un régime de l'instabilité de *flapping* pour lequel sa fréquence dépend de la vitesse gaz. La fréquence de *flapping* mesurée à  $U_G=74$  m/s rompt avec la croissance monotone de  $f_{FP}$  avec  $U_G$ . Les films à  $U_G=66$  et  $74$  m/s ne montrent pourtant pas de différence particulière dans l'oscillation du jet. Par ailleurs, la fréquence de *flapping* semble croître avec la vitesse liquide, mais la croissance de la fréquence de cisaillement est moins évidente.

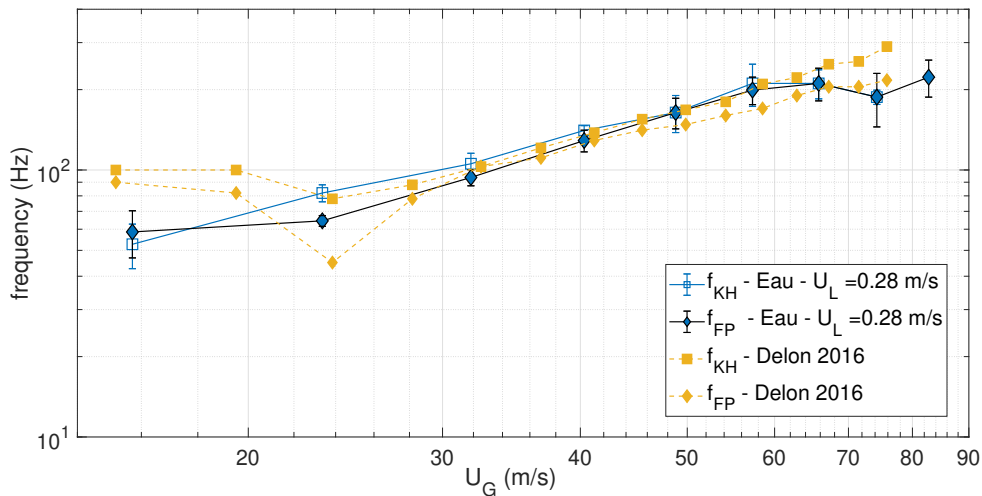


FIGURE III.51 – Évolution des fréquences de Kelvin-Helmholtz et de *flapping* avec la vitesse gaz pour de l'eau pure, et comparaison aux mesures de Delon [22] (jaune).  $U_L=0,28$  m/s. Les barres d'erreur représentent la largeur à mi-hauteur du spectre de la fft.

#### III.4.2 Instabilité de cisaillement

Les mesures de la fréquence de KH avec ajout de tensioactifs, normalisées par la valeur mesurée en eau pure, sont introduites en Figure III.54. Les mêmes résultats affichés en valeurs absolues sont fournies en Annexe A.5. Tout d'abord, l'ajout d'agents de surface ne modifie pas l'évolution linéaire de la fréquence de cisaillement avec  $U_G$  observée avec de l'eau pure, pour les conditions d'injection étudiées. Les mesures de reproductibilité avaient permis de mettre en évidence une déviation de l'ordre de 10% entre les quatre séries de mesures reproduites. L'évolution de  $f_{KH}$  avec la vitesse liquide pour la série avec  $C_{12}TAB$  n'est pas disponible du fait de l'impossibilité de déterminer une fréquence dominante à

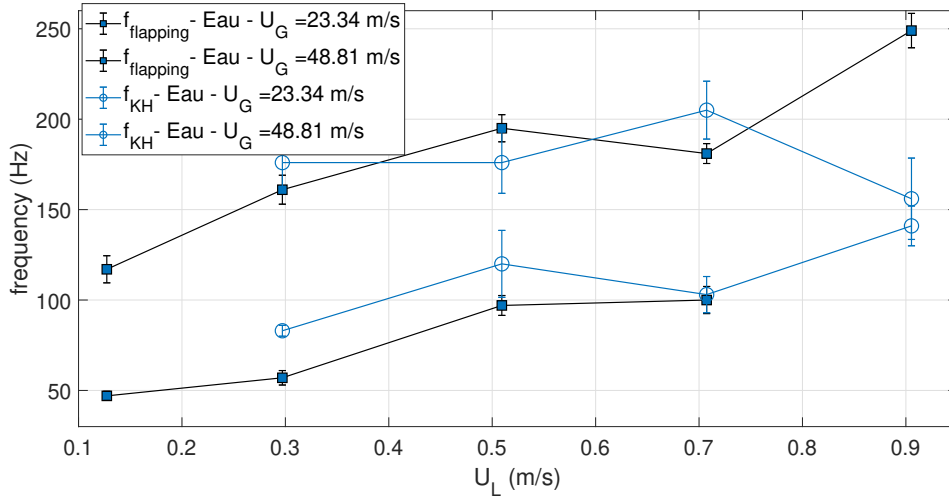


FIGURE III.52 – Évolution des fréquences de Kelvin-Helmholtz et de *flapping* avec la vitesse liquide pour de l'eau pure.  $U_G=24$  et  $49$  m/s. Les barres d'erreur représentent la largeur à mi-hauteur du spectre de la fft.

partir des spectres de la fft dans de nombreux cas. La Figure ?? fournit un exemple de spectres de ce type : un spectre exploitable obtenu pour une mesure en eau seule, et un second dans les mêmes conditions hydrodynamiques avec ajout de  $C_{12}TAB$ . Ce cas de figure met en évidence la difficulté à en extraire l'information recherchée.

Si l'on considère les variations de fréquences mesurées supérieures à 10% à partir de l'étude de reproductibilité, les résultats des mesures montrent :

- des variations significatives avec SDS (a) de l'ordre de  $\pm 20\%$ , pour la plus forte vitesse liquide ( $U_L=0,28$  m/s), mais sans tendance évidente. A vitesse liquide plus faible ( $U_L=0,14$  m/s), quelques variations de l'ordre de 20 à 40% sont notables à faible et forte vitesses gaz.
- le  $C_{12}TAB$  (b) semble diminuer la fréquence en dessous de  $U_G=30$  m/s (régime de brisure membrane) à  $U_L=0,14$  m/s, jusqu'à 50%, puis tend à augmenter au delà. Lorsque la vitesse liquide est augmentée ( $U_L=0,28$  m/s), une tendance significative à l'augmentation est à constater : une majorité de points est située entre 1,1 et 1,3 fois la fréquence mesurée sans tensioactif.
- la fréquence dominante avec  $C_{16}TAB$  (c) varie globalement peu, excepté pour quelques occurrences (augmentation de 20% à faible  $U_G=14$  m/s, jusqu'à 50% à fort  $U_G=74$  m/s). Mais les barres d'erreur sont larges. Les spectres à partir desquels la fréquence de cisaillement est extraite pour ces valeurs particulières sont fortement bruités, d'où peut être une plus grande dispersion et une augmentation de la fréquence. De plus, le temps typique de développement de l'instabilité de KH est plus faible que celle de brisure du jet, il serait donc paradoxal que le  $C_{16}TAB$  ait un effet sur la fréquence de cisaillement mais aucun sur la longueur de brisure. Nous y reviendrons par la suite.

Nous introduisons en Figure III.55 les rapports des temps de développement des vagues formées par l'instabilité de Kelvin-Helmholtz en eau pure, et des temps d'adsorption de chaque concentration de tensioactif. Le temps de développement de l'instabilité est défini comme l'inverse de la fréquence de Kelvin-Helmholtz mesurée en eau pure :

$$\tau_{KH} = 1/f_{KH \text{ pure}} \quad (\text{III.12})$$

Le  $C_{12}TAB$  est adsorbé jusqu'à 10 fois plus rapidement que le temps de formation

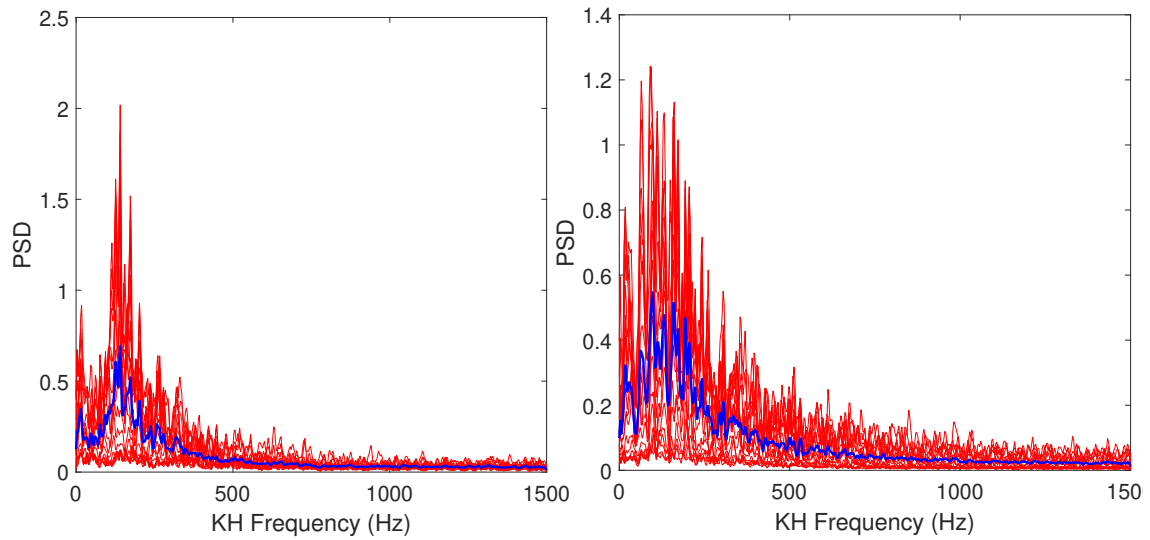


FIGURE III.53 – Spectres fréquentiels de la transformée de Fourier de l’instabilité de cisaillement. Mesure en eau seule (gauche) et avec  $C_{12}\text{TAB}$  ( $c=2.\text{cmc}$ , droite).  $U_L=0,9$  m/s,  $U_G=23$  m/s. Les courbes en bleu représentent la moyenne des différentes réalisations du spectre.

des vagues aux fortes concentrations. Le SDS et le  $C_{12}\text{TAB}$  à faible concentration (20% cmc) présentent un rapport  $\tau_{\text{KH}}/\tau_{\text{ads}}$  proche de 1. Le  $C_{16}\text{TAB}$  compris entre 0,1 et 1. Seul le  $C_{12}\text{TAB}$  à forte concentration peut donc être adsorbé dans l’intervalle de temps de formation d’une vague de cisaillement, et donc influencer sur cette instabilité. Cependant, le mécanisme de cisaillement n’est pas contrôlé par la tension de surface pour les conditions hydrodynamiques présentes (cf. section I.5.2). Il semble donc que les effets globalement peu significatifs des tensioactifs SDS et  $C_{16}\text{TAB}$  sur la fréquence de l’instabilité Kelvin-Helmholtz observés ici soient cohérents avec toutes les informations que nous venons de présenter. Cependant, le  $C_{12}\text{TAB}$  semble jouer un rôle sur cette instabilité pour certains couples de vitesses, à l’inverse de ce qui était attendu.

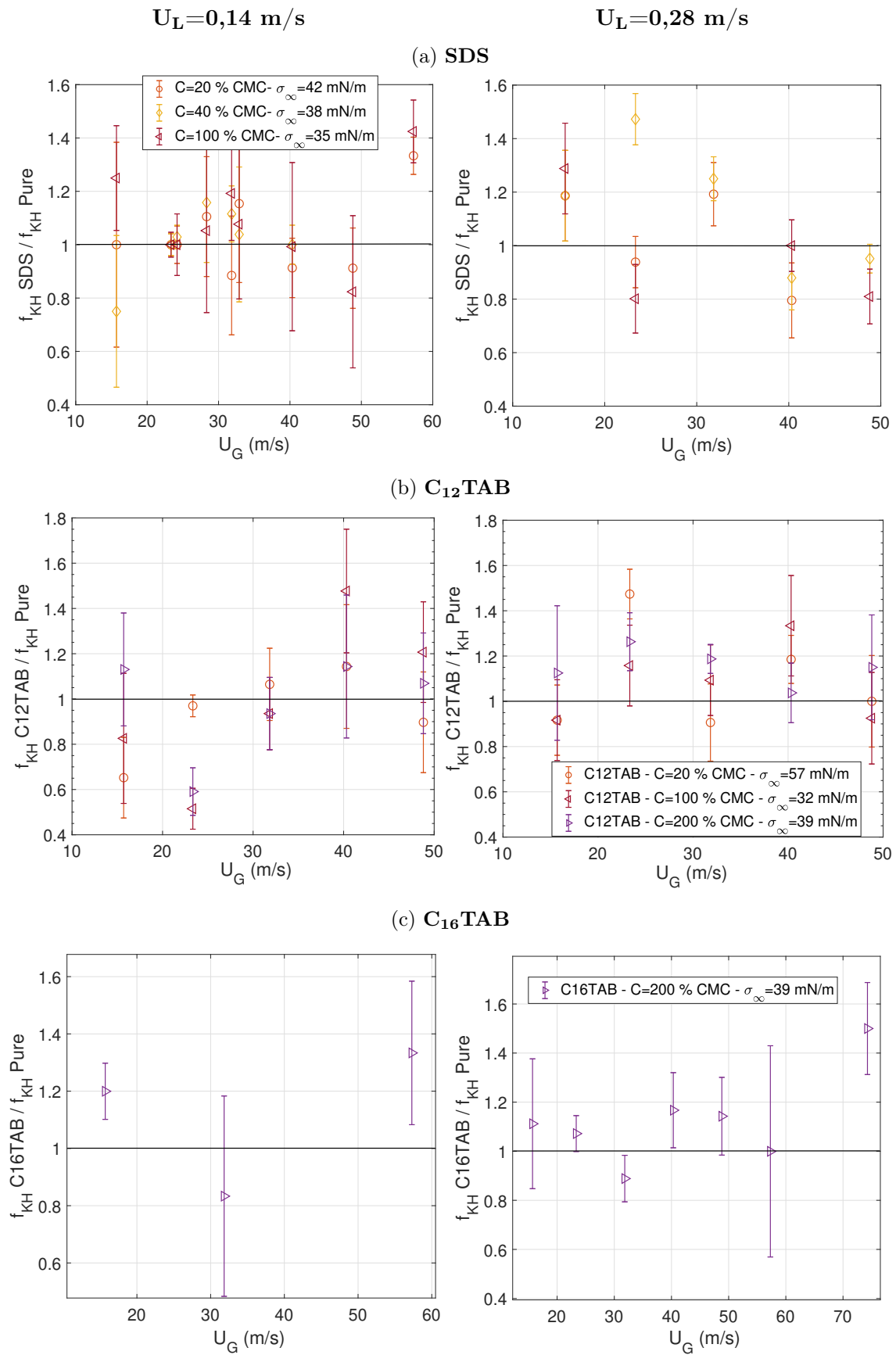


FIGURE III.54 – Évolution de la fréquence dominante de l’instabilité de Kelvin-Helmholtz en fonction de la vitesse gaz (gauche :  $U_L=0,14$  m/s, droite :  $U_L=0,28$  m/s), pour les mesures avec SDS (a), C<sub>12</sub>TAB (b) et C<sub>16</sub>TAB (c). Chaque point correspond à une fréquence obtenue pour une concentration et normalisée par la fréquence en eau seule. Les barres d’erreur correspondent à la largeur à mi-hauteur du pic dominant du spectre de la fft.

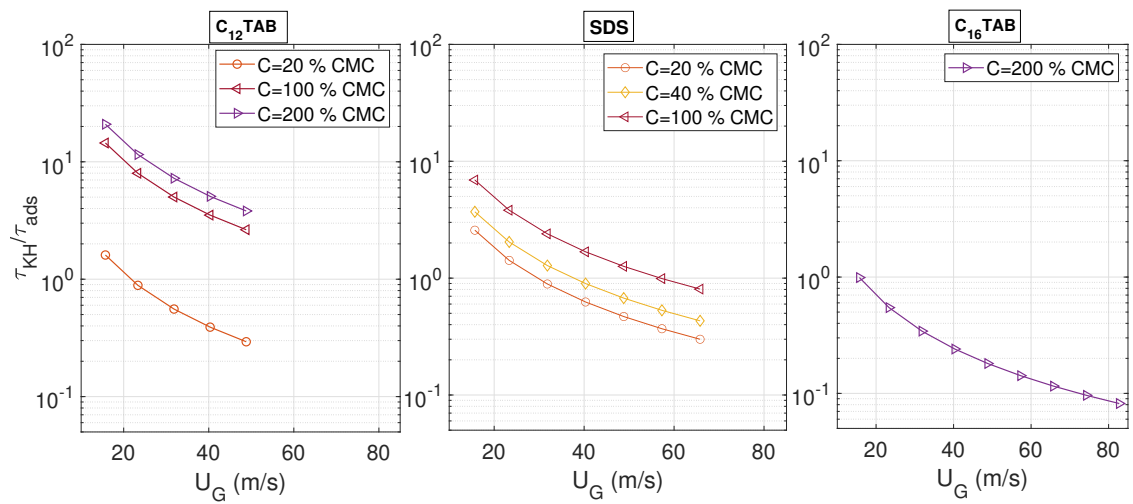


FIGURE III.55 – Rapport du temps de formation des vagues de cisaillement en eau pure et du temps d'adsorption de chaque tensioactif, en fonction de la vitesse gaz. Vitesse liquide  $U_L=0,28$  m/s.

### III.4.3 Instabilité de *flapping*

La Figure III.56 introduit les valeurs de cette fréquence obtenues avec C<sub>12</sub>TAB et normalisées par la fréquence obtenue avec de l'eau pure, en fonction de la vitesse gaz puis de la vitesse liquide. Les mêmes résultats non normalisés par la fréquence mesurée en eau pure sont disponibles en Annexe A.6. L'étude de reproductibilité de la mesure de la fréquence de *flapping* a mis en évidence une variabilité de la mesure de l'ordre de 10 à 15% (section II.3). Les mesures avec tensioactifs sont maintenant présentées. Les variations ne sont pas significatives dans l'ensemble, bien qu'une tendance à l'augmentation de la fréquence (de 10 et jusqu'à 30%) se dégage pour les concentrations supérieures ou égales à la CMC à U<sub>L</sub>=0,28 m/s et U<sub>G</sub> varié (Figure III.56, droite), de façon similaire à ce qui a été observé pour la fréquence de cisaillement dans les mêmes conditions. Lorsque U<sub>L</sub> est varié (Figure III.56, bas), les variations sont globalement faibles.

Les résultats avec SDS (Figure III.57a) et C<sub>16</sub>TAB (b) ne montrent pas non plus d'effet significatif sur la fréquence de *flapping*, excepté pour le SDS à faible vitesse gaz (U<sub>G</sub>=15 m/s) et U<sub>L</sub>=0,28 m/s (Figure III.28).

Par ailleurs, le dopage de la phase liquide ne change pas la dépendance de la fréquence de *flapping* à la vitesse gaz comme observé sans tensioactif (Figure III.51). Nous rappelons également que la fréquence de *flapping* est contrôlée dans nos conditions expérimentales par une instabilité de cisaillement asymétrique. Il semble donc cohérent de ne pas observer d'effet notable du dopage sur la fréquence de *flapping* lorsque c'est également le cas pour la fréquence de cisaillement, ou à l'inverse de mesurer des variations simultanées des fréquences des deux instabilités.

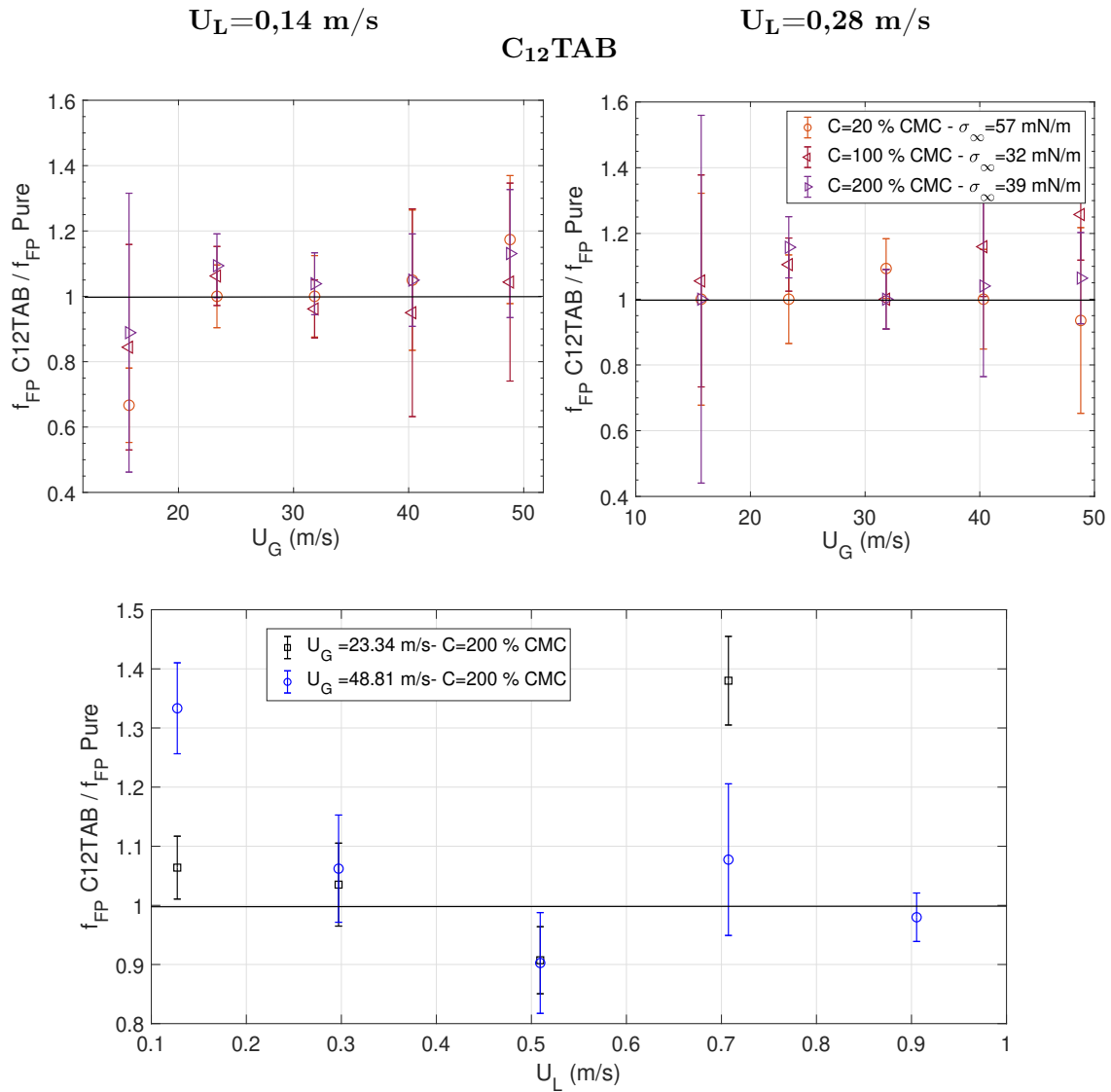


FIGURE III.56 – Évolution de la fréquence dominante de *flapping* du jet liquide en fonction de la vitesse gaz (gauche :  $U_L=0,14$  m/s, droite :  $U_L=0,28$  m/s), et de la vitesse liquide (bas). Chaque point correspond à une fréquence obtenue pour une concentration de C<sub>12</sub>TAB et normalisée par la fréquence en eau pure. Les barres d'erreur correspondent à la largeur à mi-hauteur du pic dominant du spectre de la fft.

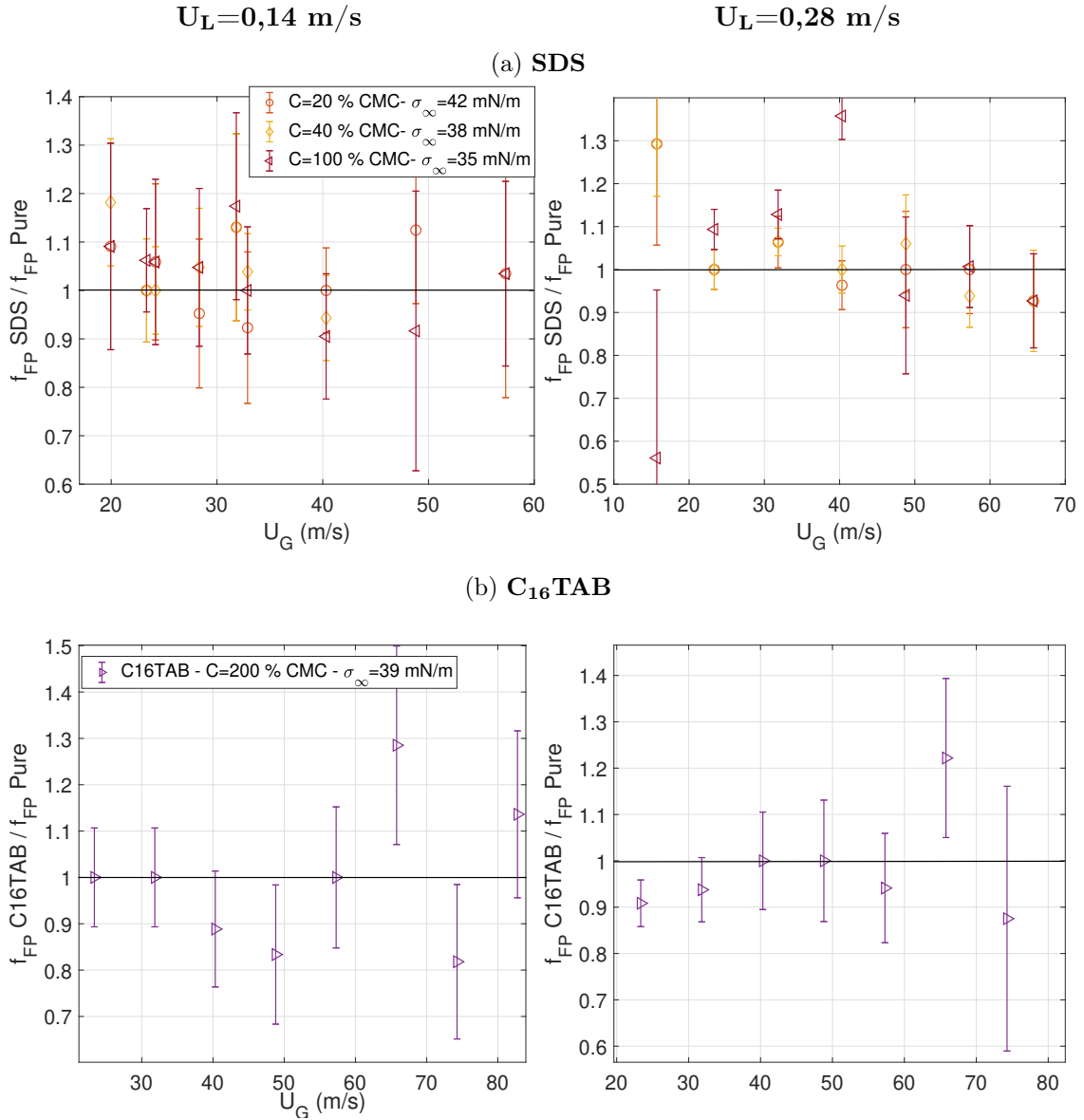


FIGURE III.57 – Évolution de la fréquence dominante de *flapping* du jet liquide en fonction de la vitesse gaz (gauche :  $U_L = 0,14 \text{ m/s}$ , droite :  $U_L = 0,28 \text{ m/s}$ ), pour les mesures avec SDS (a) et C<sub>16</sub>TAB (b). Chaque point correspond à une fréquence obtenue pour une concentration et normalisée par la fréquence en eau seule. Les barres d'erreur correspondent à l'incertitude de la mesure, évaluée comme la largeur à mi-hauteur du pic dominant du spectre de la fft.



### III.4.4 Conclusion des effets de tensioactifs sur les fréquences d'instabilités

Concernant les fréquences de cisaillement et de *flapping*, celles-ci varient globalement peu avec ajout de SDS et C<sub>16</sub>TAB excepté pour quelques occurrences. Avec C<sub>12</sub>TAB et U<sub>L</sub>=0,14 m/s, la fréquence de l'instabilité de Kelvin-Helmholtz tend à diminuer à faible vitesse gaz puis augmente légèrement pour des vitesses gaz intermédiaires. Lorsque U<sub>L</sub>=0,28 m/s, la fréquence augmente de l'ordre de 20% pour l'ensemble des concentrations. Le même constat est réalisé pour la fréquence de *flapping* dans les mêmes conditions, bien que les augmentations de la fréquence avec dopage sont peu significatives. En atomisation assistée (configuration co-axiale également), Shavit & Chigier [79] avaient vu la fréquence et l'amplitude de l'instabilité de *flapping* croître pour les plus faibles concentrations de Tergitol NP-10 injectées (mais supérieures à la CMC), et à vitesse gaz inférieure à 40 m/s. Un tel effet n'est pas remarqué ici dans nos conditions expérimentales.

### III.4.5 Synthèse des effets de tensioactifs sur la structure du jet liquide

Le tableau III.6 propose un aperçu synthétique des effets des tensioactifs observés sur la structure du jet liquide.

TABLE III.6 – Tableau récapitulatif des effets significatifs des tensioactifs, mesurés sur les caractéristiques du jet liquide atomisé. Les cases avec un pourcentage correspondent aux ordres de grandeur des plus grandes variations observées avec ajout de tensioactif. "-" : pas d'effet significatif.

	C <sub>12</sub> TAB	SDS	C <sub>16</sub> TAB
Mode de brisure du jet	Transition RP à Membrane U <sub>G</sub> =15 m/s		
Longueur de brisure	+30%	+20%	–
Amplitude radiale	-40%	-20%	–
Fréquence de brisure	-50%	–	+20%
Longueurs de dard liquide et d'établissement du <i>flapping</i>	+35-100%	+20%	–
	+35-100%	+30%	–
Fréquence de KH	+20%	–	–
Fréquence de <i>flapping</i>	+30%	–	–

## III.5 Comparaisons des temps d'adsorption aux temps de développement des instabilités et rupture : synthèse

Les estimations obtenues à partir de la littérature ont permis d'évaluer la vitesse de migration des tensioactifs vers l'interface en fonction de leur nature et concentration, dans le but d'expliquer leurs impacts sur la structure du jet quantifiés par analyse d'image. Cette section propose une synthèse des temps typiques de développement des différentes instabilités du jet liquide menant à sa désintégration, aux temps de transport des tensioactifs vers l'interface obtenus dans la littérature (cf. III.1.1).

La Figure III.58 compare les temps d'adsorption obtenus aux temps de développement des instabilités conduisant à la désintégration du jet liquide vues dans ce chapitre (pour une vitesse liquide U<sub>L</sub>=0,28 m/s et de l'eau pure). Nous rappelons le calcul de chaque temps typique :

- l'instabilité de Kelvin-Helmholtz (orange) qui correspond aux vagues axiales formées proche de l'injecteur, et son temps de développement est estimé comme l'inverse de la fréquence dominante mesurée :

$$\tau_{KH} = 1/f_{KH \text{ pure}} \quad (\text{III.13})$$

Nous rappelons que contrairement aux instabilités de Rayleigh-Taylor et Rayleigh-Plateau, le mécanisme de cisaillement causé par l'instabilité KH ne dépend pas de la tension de surface, car contrôlé par une couche de vorticit e finie ( $We_\delta \gg 1$ ) (section I.5.2).

- l'instabilit e de Rayleigh-Taylor (jaune) correspond  a la formation de ligaments. Cette instabilit e n'a pas  et e caract eris ee lors de nos mesures, mais des effets importants sur la formation des ligaments ont en revanche  et e qualitativement observ es avec le C<sub>12</sub>TAB (voir images du jet liquide, Figure III.6). Ce temps est estim e  a partir du mod ele de Hong [35] d evvelopp e dans sa th ese, comme l'inverse du taux de croissance de l'instabilit e :

$$\tau_{RT} = 1/\omega_{RT \text{ pure}} \quad (\text{III.14})$$

avec

$$\omega_{RT} = (2/3\sqrt{3})^{1/2} (\frac{\rho_L}{\sigma})^{1/4} a^{3/4} \quad (\text{III.15})$$

$a$  est l'acc el eration subie par la vague, dont la formulation est :

$$a = \frac{1}{2} \frac{C_d}{b} \frac{\rho_G}{\rho_L} (U_G - U_C)^2$$

$C_d$  est le coefficient de tra n ee, pris  egal  a 2 par Hong [35] pour une g eom etrie d'injecteur co-axiale.  $U_C$  est la vitesse de convection [24] :

$$U_C = \frac{\rho_G^{1/2} U_G + \rho_L^{1/2} U_L}{\rho_G^{1/2} + \rho_L^{1/2}}$$

La grandeur  $b$  est l' epaisseur de nappe, proportionnelle  a la longueur d'onde de l'instabilit e de Kelvin-Helmholtz :

$$b = \alpha_n \lambda = \alpha_n \cdot B \cdot \delta_G \cdot \sqrt{\rho_L / \rho_G}$$

Pour les injecteurs de g eom etrie co-axiale,  $B=2$  et  $\alpha_n=0.2$ . L' epaisseur de vorticit e est d etermin ee  a partir des mesures r ealis ees par Delon [22] au fil chaud (Annexe C), dans les conditions exp erimentales pr esentes. L' evolution avec le nombre de Reynolds gaz a  et e obtenue empiriquement :

$$\delta/H_G = 4/\sqrt{Re_G} - 2.6 \cdot 10^{-4} \quad (\text{III.16})$$

Attention, bien que trac e sur la Figure III.58, l' epluchage du jet d u  a l'instabilit e Rayleigh-Taylor n'appara t qu'au dessus de  $U_G=25-30$  m/s.

- le temps de pincement des ligaments form es, estim e par Marmottant & Villermaux [61] :

$$\tau_b \approx (\rho_L d_0^3 / \sigma)^{1/2} \quad (\text{III.17})$$

avec  $d_0$  le diam etre  equivalent du ligament  equivalent  a la longueur d'onde des ondulations transverses  a l' ecoulement des vagues :

$$d_0 \approx \lambda_\perp \approx \delta_G We_\delta^{-1/3} (\rho_L / \rho_G)^{1/3}$$

$We_\delta$  est le nombre de Weber bas e sur l' epaisseur de vorticit e gaz :  $We_\delta = \rho_G U_G^2 \delta / \sigma$ .

- Le temps de brisure du jet liquide (bleu), est approch e comme le rapport de la vitesse liquide inject ee et de la longueur de brisure moyenne mesur ee avec de l'eau pure :

$$\tau_{LB} = U_L / \langle L_B \rangle_{\text{pure}} \quad (\text{III.18})$$

C'est donc un temps de convection.

- le temps typique de brisure du jet liquide basé cette fois sur la fréquence de brisure du jet liquide (ou temps de pulsation du jet, violet) :

$$\tau_{\text{puls}} = 1/f_{L_B \text{ pure}} \quad (\text{III.19})$$

Étant donné que le transport à l'interface est contrôlé par cinétique, ce sont ces temps qui sont comparés à ceux de développement des instabilités. Le temps caractéristique du C<sub>16</sub>TAB est en rouge, car le coefficient d'adsorption n'a pu être estimé qu'à partir des mesures de la TSD de Stubenrauch *et al.* [83], pour une concentration de  $c=1,1$  cmc et non 2 cmc. Plusieurs informations peuvent être déduites de la Figure III.58 :

1. SDS et C<sub>12</sub>TAB ont les temps d'adsorption les plus courts pour  $C=100$  et 200% CMC (environ  $10^{-3}$  s), contre  $4 \cdot 10^{-2}$  s pour le C<sub>16</sub>TAB. Le temps de brisure par convection du jet liquide est quant à lui de l'ordre de  $10^{-1}$  s, et est plus faible à forte vitesse gaz. Le temps de transfert du C<sub>16</sub>TAB est donc 10 fois supérieur à celui du C<sub>12</sub>TAB et du SDS, à concentration relative équivalente. Ce qui explique les faibles effets de celui-ci sur la longueur de brisure moyenne, la concentration surfacique proche de la rupture du jet est probablement trop faible pour réduire significativement la tension de surface.
2. De plus, les images acquises avec C<sub>12</sub>TAB ont montré un effet important à fortes concentrations ( $C=100$  et 200% CMC) sur les tailles de gouttes résultantes de l'épluchage du jet, mais aucune différence avec le SDS. Or, le temps d'adsorption du SDS pour  $C=100\%$  CMC est grand devant les temps de développement et de pincement des instabilités de surface Rayleigh-Taylor. Le temps de peuplement de l'interface par le SDS semble donc être trop court devant celui de formation et d'arrachement des ligaments pour agir sur cette instabilité. Ce n'est pas le cas du C<sub>12</sub>TAB, qui à même concentration relative possède un temps d'adsorption équivalent à celui de pincement des ligaments, ce qui peut expliquer le phénomène d'intensification de l'épluchage observé avec ce tensioactif.
3. Le C<sub>12</sub>TAB et le C<sub>16</sub>TAB ont un impact sur la fréquence de brisure du jet liquide. Le C<sub>12</sub>TAB la réduit significativement, et le C<sub>16</sub>TAB l'augmente malgré de fortes incertitudes sur la mesure. Lorsque le jet liquide se brise, son extrémité peut être considérée comme une nouvelle interface qui va être de nouveau peuplée par le tensioactif avant la brisure suivante. Autrement dit, le temps d'adsorption doit être rapide devant le temps entre deux brisures successives pour avoir un éventuel effet sur la pulsation du jet liquide. Or, les temps d'adsorption théoriques du SDS et du C<sub>12</sub>TAB sont plus faibles que le temps du pulsation du jet, contrairement au C<sub>16</sub>TAB. Les résultats ne sont donc pas consistants avec les comparaisons des temps typiques obtenus.
4. Nous avons pu estimer approximativement la tension de surface à l'extrémité du jet liquide avant brisure à partir du modèle de Delon [22] (cf. section III.3.1.7). Il avait été constaté un meilleur accord du modèle avec le C<sub>12</sub>TAB en supposant une adsorption complète ( $\sigma=\sigma_\infty$ ), tandis qu'une adsorption partielle pour les mesures avec SDS donnaient un meilleur accord. Les estimations des temps de transport introduites ici semblent aller dans ce sens : le temps d'adsorption du SDS vaut environ deux fois celui du C<sub>12</sub>TAB à 100% CMC ( $\tau_K(\text{SDS}, 1.\text{cmc}) \approx 2 \cdot \tau_K(\text{C}_{12}\text{TAB}, 1.\text{cmc})$ ).
5. Les temps d'adsorption du C<sub>12</sub>TAB sont plus courts que les temps de formation des vagues Kelvin-Helmholtz pour des concentrations d'une et deux fois la cmc. Pourtant, aucun effet significatif de ce tensioactif n'a été mesuré sur la fréquence de cisaillement. Nous rappelons que pour l'ensemble des conditions d'injection de l'étude, le mécanisme de cisaillement est contrôlé par une épaisseur de vorticit  finie ( $We_\delta \gg 1$ ). Dans ce cas, le mécanisme de cisaillement ne d pend pas de la tension

de surface (voir section I.5.2), ce qui explique l'absence d'effet du tensioactif sur la fréquence de KH.

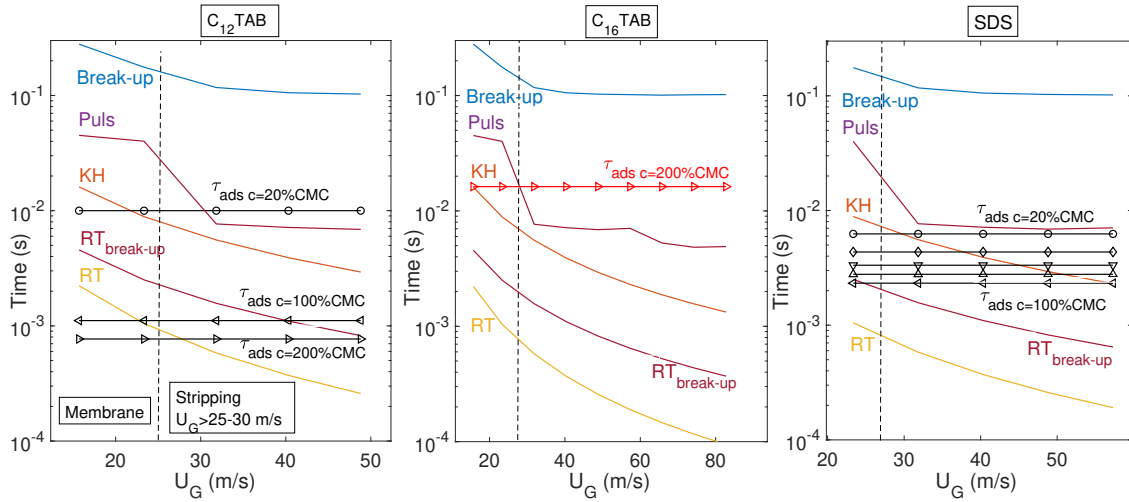


FIGURE III.58 – Temps caractéristiques de développement des instabilités : Rayleigh-Plateau par convection (bleu) et à partir de la fréquence de brisure du jet mesurée ("pulsation du jet", violet), Kelvin-Helmholtz (orange), Rayleigh-Taylor (jaune), et pincement des ligaments formés par l'instabilité de Rayleigh-Taylor (magenta) pour de l'eau pure. Ces temps d'instabilités estimés à partir des équations III.13-III.3 sont comparés aux temps typiques d'adsorption des tensioactifs pour chaque concentration (temps cinétiques, tableau III.1).  $\circ$   $C=20\%$  CMC,  $\diamond$   $C=40\%$  CMC,  $\nabla$   $C=60\%$  CMC,  $\triangle$   $C=80\%$  CMC,  $\triangleleft$   $C=100\%$  CMC,  $\triangleright$   $C=200\%$  CMC.  $C_{12}$ TAB (gauche),  $C_{16}$ TAB (centre), SDS (droite).  $U_L=0,28$  m/s.

### III.6 Conclusion

Ce chapitre a présenté la caractérisation expérimentale par ombroscopie de l'influence sur la structure du jet liquide de trois tensioactifs à différentes concentrations.

Tout d'abord, une observation qualitative du phénomène d'atomisation sur l'injecteur co-axial montre un fort effet du tensioactif, notamment avec  $C_{12}$ TAB et au delà de la cmc, en particulier sur le phénomène d'épluchage à vitesse gaz modérée à forte. De plus, tous les tensioactifs induisent un changement de mode de brisure du jet liquide à faible vitesse gaz, d'une rupture de type Rayleigh-Plateau à membrane.

Puis les résultats d'analyse d'image ont permis de quantifier ces observations par évaluation d'un certain nombre de caractéristiques du jet liquide : longueur de brisure, amplitude de *flapping*, longueurs de dard liquide et d'établissement du *flapping*, et enfin fréquences d'instabilités. En premier lieu, l'ajout de tensioactifs ne modifie pas le comportement de ces grandeurs avec les paramètres de contrôle variés au cours de l'expérience (les vitesses liquide et gaz). Ensuite, les mesures des longueurs intacte et de brisure du jet moyennes mettent en évidence un allongement en présence de SDS et  $C_{12}$ TAB, d'autant plus important que la concentration est élevée (de l'ordre de 20% avec SDS autour de la cmc, jusqu'à 40% avec  $C_{12}$ TAB). Le  $C_{16}$ TAB n'a en revanche pas d'effet significatif, ce qui indique que l'adsorption est faible avant la brisure du jet liquide et ne permet pas d'abaisser significativement la tension de surface. Après avoir confirmé avec et sans dopage l'évolution linéaire de  $L_I$  et  $L_B$  avec la vitesse liquide, et asymptotique avec la vitesse gaz au delà de  $U_G=30-40$  m/s, nous avons confronté nos données expérimentales de longueurs de jet au modèle de Delon [22], fondé sur une compétition entre temps de convection et temps de rupture par

instabilité capillaire. Un bon accord est obtenu entre prédictions et mesures. En variant dans le modèle la valeur de la tension de surface à l'extrémité du jet liquide, un meilleur accord mesures-modèle est constaté en supposant une adsorption partielle du SDS avant brisure, et une adsorption complète du C<sub>12</sub>TAB. Les temps d'adsorption estimés par la suite à partir de la littérature viennent conforter cette hypothèse. En ce qui concerne la fréquence de brisure du jet liquide, elle est réduite jusqu'à 50% en présence de C<sub>12</sub>TAB et augmentée de 20% avec C<sub>16</sub>TAB.

Une investigation des temps de diffusion et d'adsorption cinétique mettent en évidence un processus limité par cinétique pour l'ensemble des systèmes testés, et permet de montrer que les temps d'adsorption du SDS et C<sub>12</sub>TAB sont très faibles devant les temps de rupture du jet liquide (basés sur la convection et la pulsation du jet, i.e.  $\tau_{\text{ads}}/\tau_{\text{LB}} \ll 1$  et  $\tau_{\text{ads}}/\tau_{\text{puls}} \ll 1$ ). Ce n'est pas le cas du C<sub>16</sub>TAB, ce qui permet de mieux comprendre les phénomènes observés sur la longueur de brisure avec les différents mélanges. En particulier, le C<sub>12</sub>TAB a une cinétique plus rapide que le SDS pouvant expliquer des augmentations plus fortes de la longueur de brisure avec ce candidat. Ce qui est conforté par les confrontations du modèle qui suggèrent une adsorption partielle du SDS avant brisure du jet, complète du C<sub>12</sub>TAB.

Des points restent cependant à éclaircir. Notamment, pourquoi une plus forte augmentation de la longueur de brisure est constatée à forte vitesse gaz dans la majorité des cas, alors que le temps de brisure du jet est réduit (ce qui implique théoriquement une plus faible concentration de surface à l'extrémité du jet). En outre, les mesures de visco-élasticité ont permis de conforter l'hypothèse que l'adsorption du C<sub>16</sub>TAB est limitée par cinétique. Les autres candidats n'ont pu être caractérisés. En perspective supplémentaire, il serait possible de mesurer le taux d'étirement des ligaments, évalué comme l'inverse du rapport des variations de leur volume et de leur allongement longitudinal ( $1/(\partial V/\partial z)$ ).

Puis les mesures de l'angle de jet moyen et l'amplitude de déplacement radial montrent une forte réduction de ce dernier avec C<sub>12</sub>TAB. Ce tensioactif réduit donc l'oscillation du jet liquide. Cet effet n'a pas été observé pour le SDS, ni pour le C<sub>16</sub>TAB.

Les mesures des fréquences d'instabilités de surface et de *flapping* ne révèlent qu'un effet significatif du C<sub>12</sub>TAB sur ces instabilités (augmentées de l'ordre de 20 et 30% respectivement). Pourtant, la fréquence de cisaillement n'est pas censée dépendre de la tension de surface aux régimes d'injection étudiés.

Les effets du C<sub>12</sub>TAB sur le phénomène d'épluchage observé visuellement s'explique d'une part par la dépendance à la tension de surface du mécanisme de formation des ligaments et de leur arrachement. Et d'autre part par un temps d'adsorption du tensioactif suffisamment rapide au delà de la cmc, comparé au temps de rupture des ligaments.

Il semble donc que le paramètre principal pilotant l'effet des tensioactifs sur le jet liquide soit le temps d'adsorption. Plus le temps d'adsorption est court, plus la concentration surfacique en tensioactif est importante et la tension superficielle réduite. Tous ces changements induits sur la structure du jet liquide peuvent contribuer à modifier les tailles de gouttes dans le spray plus en aval. C'est pourquoi la suite de l'étude sera consacrée à la caractérisation du spray.

## Chapitre IV

# Étude de la sonde optique Doppler

Dans ce chapitre, la fiabilité de la sonde optique Doppler est évaluée pour la détection de gouttes issues de l'atomisation assistée. Tout d'abord, les signaux bruts délivrés par la sonde optique Doppler sont analysés pour différents débits gaz et à débit liquide fixe, et une nouvelle routine de traitement efficace dédiée à la détection des gouttes est présentée. Ensuite, les distributions de vitesses mesurées à partir des signaux Doppler sont considérées. Enfin, les profils radiaux des variables locales sont mesurés en aval de l'injecteur dans diverses conditions de fonctionnement. Les performances de la sonde Doppler sont finalement testées en comparant le flux global de liquide calculé à partir de l'intégration spatiale des flux locaux avec le débit de liquide injecté dans l'atomiseur.

### IV.1 Développement et amélioration des routines de traitement du signal

#### IV.1.1 Détection et caractérisation de la phase liquide

Le signal illustré sur la Figure II.17 (cf. section II.4.2) est un signal idéal d'une goutte percée par la sonde. L'extraction des temps de résidence liquide et des franges Doppler peut être plus difficile à déterminer lorsque les signaux sont distordus. C'est notamment le cas lorsque le capteur interagit avec de très petites gouttes ou lors d'impacts tangentiels. En effet, lorsque la longueur de corde est inférieure à la longueur de latence ( $6 \mu m$ ), le mouillage de la partie sensible de la sonde est partiel et le signal présente une amplitude limitée, comme le montre la Figure IV.1.

Une autre problématique survient lors de l'utilisation de la sonde dans un spray dense, en raison du manque de stabilité du niveau gaz. La Figure IV.2 présente deux signaux bruts acquis à des débits de gaz  $Q_G = 300$  et  $2667 L/min$ . Ces exemples mettent en évidence les différences majeures de fréquence d'arrivée des gouttes et dans l'évolution du niveau de gaz en fonction du temps. A faible débit de gaz, la fréquence d'arrivée des gouttes est plutôt faible et la plupart des signaux atteignent leur pleine amplitude, tandis qu'à fort débit de gaz, la fréquence d'arrivée des gouttes augmente drastiquement et les signaux d'amplitude partielle sont plus fréquents. Cela peut s'expliquer par la diminution de la taille moyenne des gouttes lorsque la vitesse du gaz augmente, impliquant une augmentation de la proportion de signaux d'amplitude partielle. De plus, le niveau gaz devient de moins en moins stable lorsque la vitesse du gaz augmente, car il y a de moins en moins de temps entre les gouttes successives pour que la pointe de la sonde sèche entièrement.

Pour surmonter cette difficulté dans la détection des gouttes pour de tels signaux, nous avons développé une routine de traitement effective sur une large gamme de conditions d'injection, capable de trouver toutes les gouttes incluant les signaux distordus. Ce traitement fournit non seulement le temps de résidence du liquide pour chaque signal mais aussi l'amplitude du signal correspondant, ce qui permet d'étudier par la suite la présence de signaux Doppler en fonction de l'amplitude du signal et de déterminer un éventuel biais

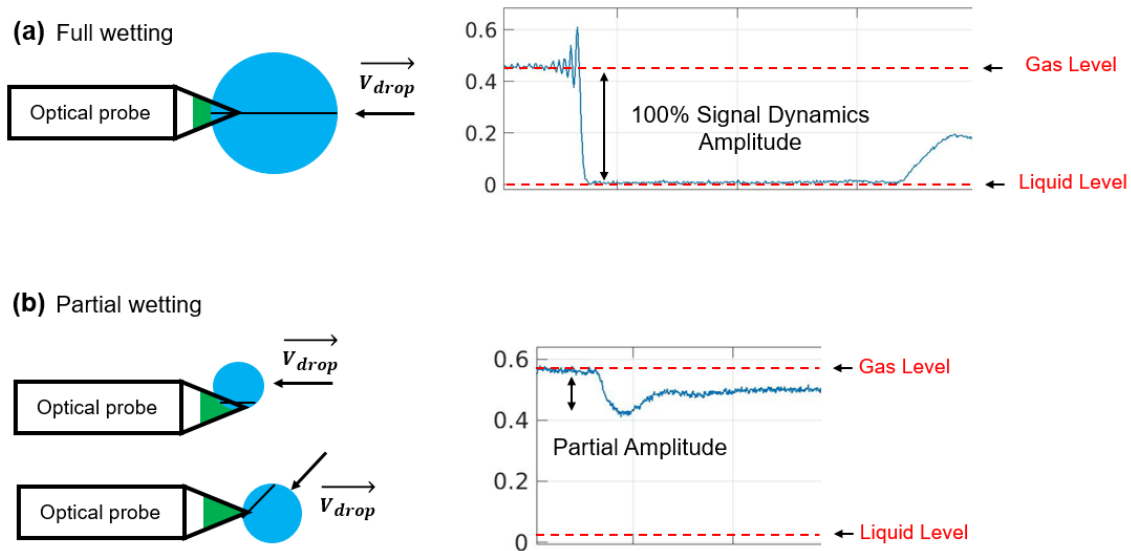


FIGURE IV.1 – Illustration de la dépendance de l’amplitude du signal à la taille de la goutte et à l’angle d’impact. (a) Cas d’une goutte plus grande que la longueur sensible de la sonde et frappée le long de son diamètre. (b) Cas d’une petite goutte interagissant avec la sonde avec une grande excentricité, ou dont la trajectoire fait un angle avec l’axe de la sonde : les lignes sombres à l’intérieur des gouttes sont les cordes mesurées. La partie verte est la longueur de latence.

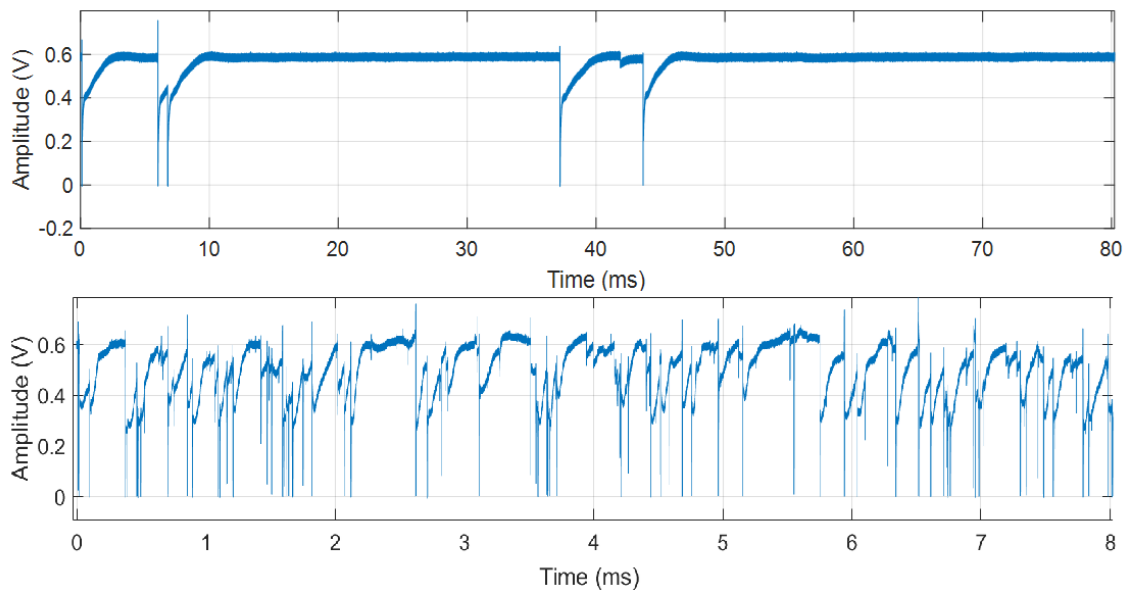


FIGURE IV.2 – Extraits de signaux bruts à faible et fort débits gaz :  $Q_G = 300 \text{ L/min}$  (haut) et  $Q_G = 2667 \text{ L/min}$  (bas).  $Q_L = 20 \text{ L/h}$ . On notera la différence dans les échelles de temps entre les deux cas.

sur la détection des vitesses de gouttes. Pour ce faire, nous appliquons au signal brut un filtre Butterworth passe-haut de second ordre (-12 dB/octave) avec une fréquence de coupure de 1 MHz. Le choix de cette fréquence dépend du gradient de transition de la phase gazeuse à la phase liquide, et donc de la vitesse des gouttes. Elle a été choisie de sorte qu’elle reste toujours inférieure à celles des transitions de phase, de manière à couper uniquement les parties stables comme illustré sur la Figure IV.3 : toutes les parties du signal ayant une amplitude stable (comme un plateau liquide ou un niveau de gaz stable entre deux événements par exemple) tombent à 0 Volts. Seules les transitions de phase et les

salves Doppler restent non nulles. Les franges Doppler ne sont pas coupées, mais ont une amplitude positive après avoir été filtrées, tandis que les transitions gaz-liquide deviennent négatives en amplitude. Comme on ne souhaite détecter que ces dernières dans un premier temps, un seuil négatif en amplitude est appliqué au signal filtré. Cela permet de détecter la transition de phase même si le niveau de gaz local varie d'une goutte à l'autre. Dans un second temps, l'on procède à une recherche des minima locaux dans la phase liquide en partant de la position de la transition de phase précédemment trouvée, comme le montre la Figure IV.4. L'amplitude de chaque événement  $i$  peut alors être extraite, et est calculée comme suit :

$$\text{Amplitude}(i) = V_{G \text{ local}}(i) - y_{\min}(i) \quad (\text{IV.1})$$

où  $V_{G \text{ local}}(i)$  est le niveau local de gaz précédant l'événement  $i$  et  $y_{\min}(i)$  est le minimum local. Le temps de résidence du liquide  $t_L(i)$  (en rouge, Figure IV.4) est évalué comme le temps correspondant au plateau trouvé à partir des minimums locaux  $y_{\min}(i)$ . Il s'agit du temps passé par la sonde dans la phase liquide. Un seuil en amplitude égal à  $1/20$  de la dynamique du signal local  $\text{Amplitude}(i)$  est utilisé dans ce but. Enfin, la présence d'un burst Doppler est évaluée par un processus similaire. Le maximum local  $y_{\max}(i)$  avant la transition gaz-liquide est recherché. Si ce pic est en dehors du bruit du niveau de gaz local  $N(V_{G \text{ local}}(i))$ , on suppose qu'il s'agit de la signature d'une salve Doppler (Figure IV.4). Le bruit est estimé comme la différence entre la moyenne du signal et la moyenne de ses crêtes sur l'intervalle de temps correspondant au niveau gaz local trouvé précédemment (en vert sur la Figure IV.4). Ce traitement permet de trouver les événements de goutte, que leurs amplitudes soient complètes ou non. Il demande néanmoins des temps de calcul importants lorsque la fréquence d'arrivée des gouttes est élevée (i.e. pour un spray dense, cf. exemple Figure IV.2, bas).

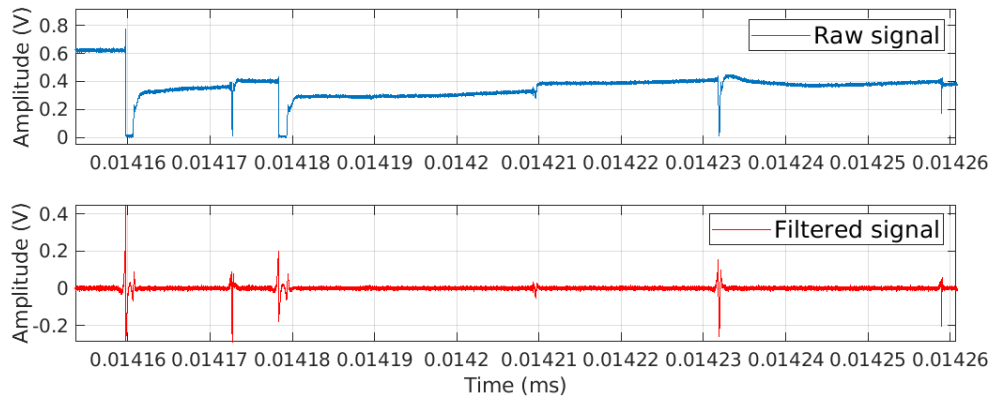


FIGURE IV.3 – Filtre passe-haut Butterworth de 1 MHz (bas) appliqué à un signal brut.

À cette étape, il est important de savoir si tous les temps liquides détectés sont physiques ou non, c'est-à-dire si d'éventuelles détections erronées peuvent être induites par le traitement. La Figure IV.5 (gauche) présente la distribution des temps de résidence liquide pour une acquisition à débit de gaz élevé  $Q_G = 2667 \text{ L/min}$ , où la fluctuation du niveau gaz est très importante (comme montré en Figure IV.2). Les détections douteuses de signaux, comme les plus courts et les plus longs, ont été vérifiées visuellement. Bien que tous les  $t_L$  courts soient des signaux réels, il s'est avéré que des parties bruitées du signal pouvaient être, en de très rares occasions, interprétées à tort comme de très grandes gouttes : sur les 200 temps liquides les plus élevés vérifiés, 5 étaient faux, comme l'illustre la Figure IV.5. (droite). Cela correspond à un rapport d'environ  $1/10000$  du nombre total d'événements trouvés dans l'acquisition. Dans ce qui suit, les  $1/10000$  temps liquides les plus longs sont systématiquement supprimés.



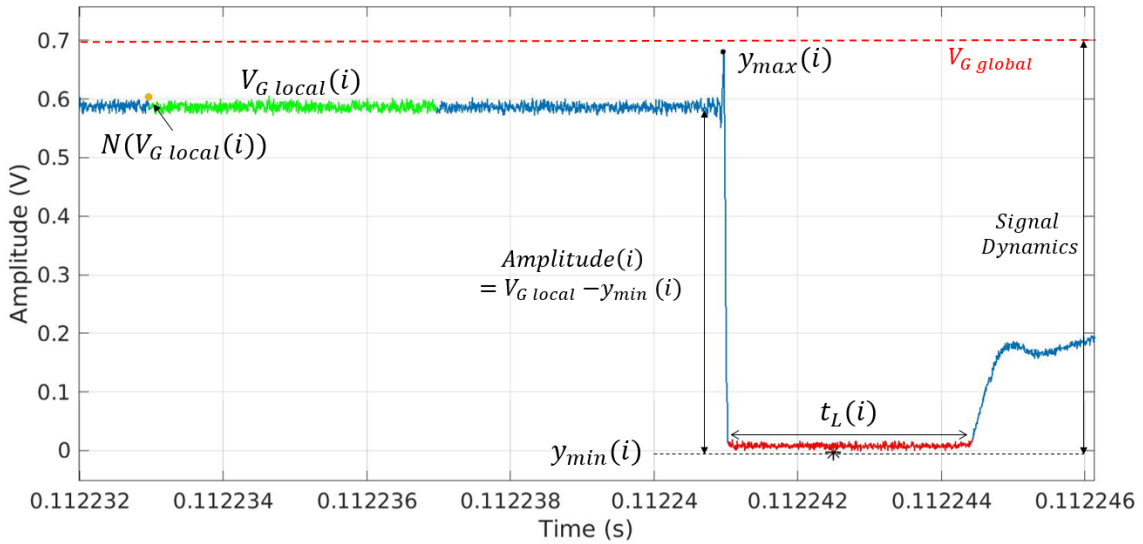


FIGURE IV.4 – Illustration des variables mesurées pour chaque évènement  $i$ .

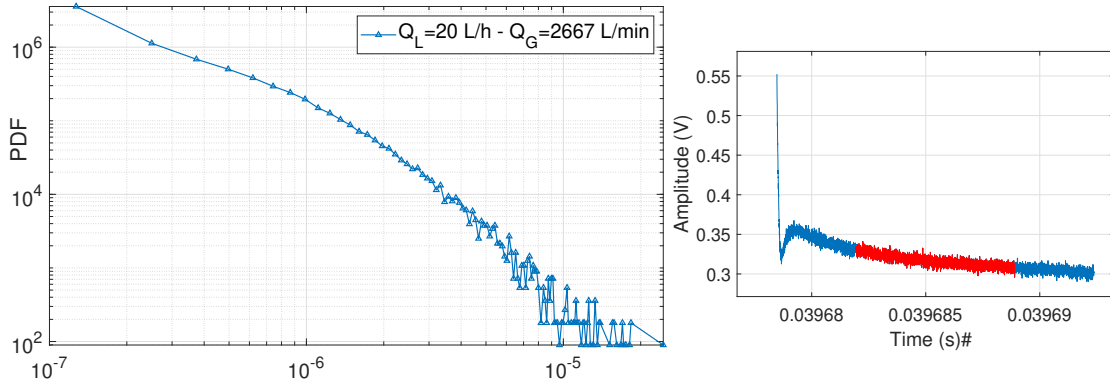


FIGURE IV.5 – Distribution des temps liquides après traitement (gauche). Exemple de détection erronée (partie rouge), le signal représenté est une transition entre deux événements et non un plateau liquide (droite). Après vérification de centaines de signaux individuels correspondant aux temps de liquide les plus élevés, ce type de détection erronée représente environ 1/10000 du nombre total d'événements.

#### IV.1.2 Exploitation du signal Doppler pour la mesure de vitesses

Une fois le signal Doppler détecté (Figure II.17), celui-ci doit être caractérisé afin de savoir s'il est valable ou non pour la détermination de la vitesse de la goutte. Dans cette section, une analyse de sensibilité aux paramètres de traitement est présentée après avoir détaillé le principe de fonctionnement du traitement.

Un filtre passe-bande est d'abord appliqué sur chaque signal Doppler afin d'en extraire les franges et de supprimer à la fois son bruit haute fréquence et son décalage. Ensuite, deux critères sont utilisés pour la validation du signal comme le montre la Figure IV.6 : le signal retenu doit présenter un nombre minimum de franges successives  $n$ , et ces périodes doivent être homogènes dans un pourcentage  $\epsilon$ . Enfin, la fréquence Doppler moyenne est calculée sur la base des  $n$  périodes retenues, et permet d'en déduire la vitesse d'interface définie par l'équation II.4.

L'analyse de sensibilité a été réalisée en utilisant une acquisition obtenue pour des vitesses d'injection  $U_L = 0,28$  m/s et  $U_G = 57$  m/s, obtenue avec une fréquence d'acquisition

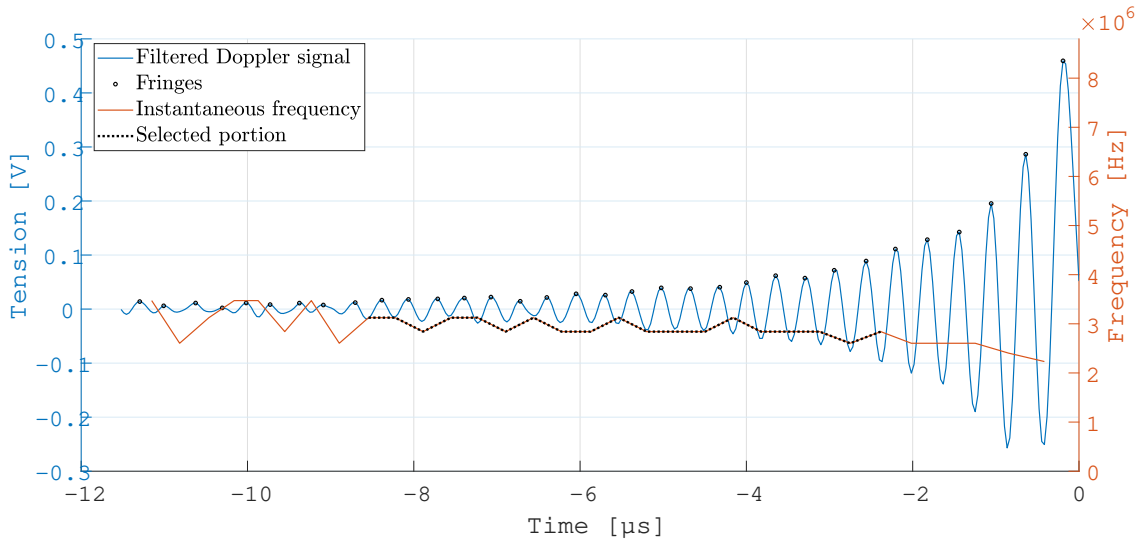


FIGURE IV.6 – Illustration du traitement utilisé pour la validation d'un signal Doppler.

$f_{ech} = 500$  MHz pendant une durée de 70 ms. La sonde est située sur l'axe de l'injecteur liquide et à une distance axiale  $z=60$  mm.

Premièrement, les fréquences de coupure du passe-bande haute  $f_{HP}$  et basse  $f_{LP}$  ont été ajustées de sorte à recouvrir l'ensemble des vitesses de gouttes de l'acquisition. Les fréquences en dehors de la plage  $[f_{HP} - f_{LP}]$  sont coupées pour éliminer le bruit. En faisant varier la bande passante dans l'intervalle  $1/1000 < f_{HP}/f_{acq} < 1/50$ , la dynamique réelle des gouttes de liquide est retrouvée : la vitesse minimale de la goutte ainsi obtenue est  $V_{min 0} = 3,5$  m/s correspondant à une fréquence Doppler  $f_{min 0} = 4,5$  MHz, et la vitesse maximale  $V_{max 0} = 51$  m/s avec  $f_{max 0} = 66$  MHz.

La dynamique globale de la bande passante  $DR_{filter} = f_{LP}/f_{HP}$  est ensuite variée autour de la dynamique réelle des vitesses obtenue précédemment  $DR_0 = f_{max 0}/f_{min 0} = 15$ , dans le but de déterminer dans quelle mesure elle peut être récupérée par le traitement du signal. La Figure IV.7 fournit les vitesses minimales et maximales adimensionnelles détectées, respectivement  $f_{min}/f_{min 0}$  et  $f_{max}/f_{max 0}$  en fonction de la dynamique du passe-bande  $DR_{filter}/DR_0$ . L'on peut voir sur la Figure IV.7 (centre) que  $V_{min 0}$  est faiblement altérée par la dynamique de la bande passante. En revanche, la récupération de  $V_{max 0}$  implique  $f_{LP} > 0,73.f_{max 0}$  quelque soit la dynamique du filtre (Figure IV.7, gauche). La dynamique réelle (droite) est cependant plus sensible aux paramètres du filtre. Elle est obtenue pour  $f_{LP} = 0,73$  à  $1,9.f_{max 0}$  et  $DR_{filter} > 2,6DR_0$ .

En appliquant ces paramètres de passe-bande, nous examinons la sensibilité du traitement des vitesses au nombre minimum de franges successives ( $n$ ) et à leurs homogénéité ( $\epsilon$ ). Les distributions des vitesses obtenues pour différentes valeurs de ces paramètres telles que  $10 \leq n \leq 20$  et  $5\% \leq \epsilon \leq 25\%$ , sont proposées en Figure IV.8. Après avoir vérifié individuellement les signaux correspondant aux vitesses les plus élevées, il ressort d'une part que les valeurs  $n = 30$  ou  $40$  induisent une coupure des vitesses les plus élevées, et d'autre part que les vitesses les plus élevées obtenues pour  $\epsilon = 20\%$  et  $25\%$  sont de faux signaux Doppler considérés comme valides. Cela démontre que le couple ( $n = 10; \epsilon = 15\%$ ) est adéquat pour la validation Doppler. De plus, le taux de validation - le rapport entre les signaux Doppler valides et le nombre d'événements détectés -, dépend également de ces paramètres et est représenté sur la Figure IV.9. Pour ( $n = 10; \epsilon = 15\%$ ), le taux de validation sur cette acquisition est de 0,6 ce qui est satisfaisant. En effet, il s'agit d'un critère important lors de l'extrapolation des cordes pour le calcul du flux (comme discuté par la suite, cf. section IV.1.3). Les paramètres optimisés trouvés dans cette section pour définir la dynamique du passe-bande et les critères de validation d'un signal Doppler ont été utilisés pour calculer toutes les vitesses tout au long de cette étude.

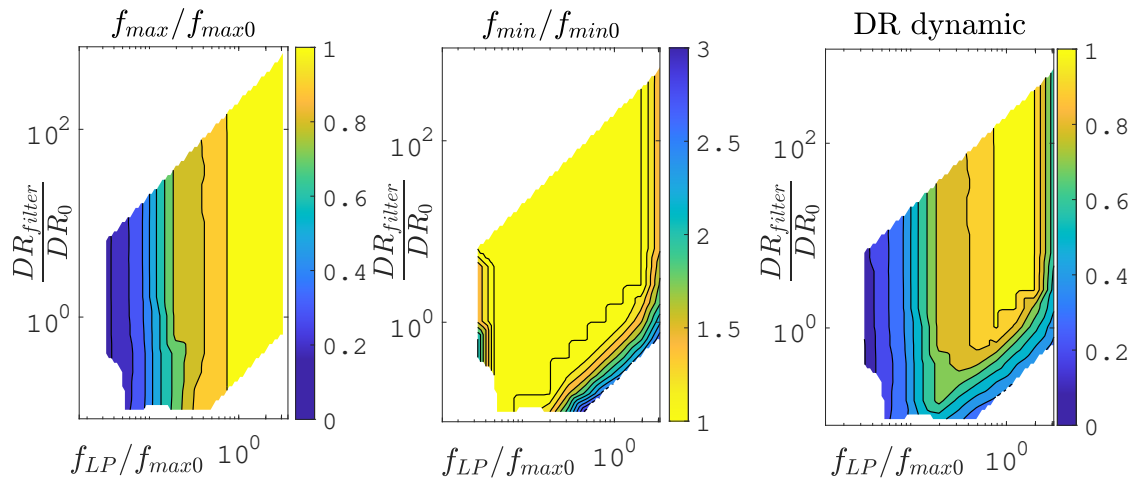


FIGURE IV.7 – Évolution de la dynamique de la vitesse détectée en fonction des valeurs du filtre passe-bande. Vitesse maximale détectée (fréquence  $f_{\max}$ ) en fonction du filtre passe-bas  $f_{LP}$  et de la dynamique du filtre passe-bande (gauche). Vitesse minimale détectée (fréquence  $f_{\min}$ ) fonction du filtre passe-bas  $f_{LP}$  et de la dynamique passe-bande (centre). Rapport des dynamiques vitesse détectée/vitesse réelle  $\frac{f_{\max}/f_{\min}}{f_{\max 0}/f_{\min 0}}$  fonction du filtre passe-bas  $f_{LP}$  et de la dynamique passe-bande (droite). Pour les graphiques de gauche et de droite, les zones jaunes correspondent à un rapport entre la dynamique de la vitesse détectée et celle de la vitesse réelle égal à un, les zones bleues à zéro.

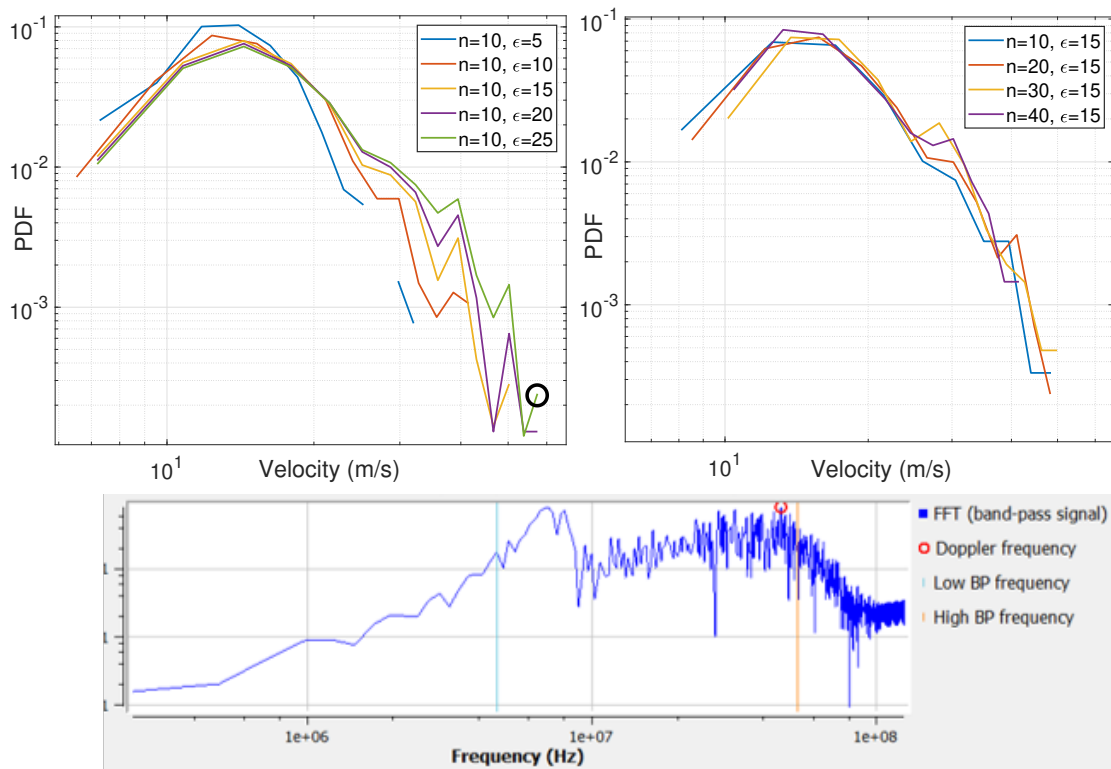


FIGURE IV.8 – Sensibilité de la PDF des vitesses à l’homogénéité spatio-temporelle minimale  $\epsilon$  (%) pour  $n = 10$ , requise pour la validation Doppler (gauche) et au nombre minimal de franges  $n$  pour  $\epsilon = 15$  % (droite). Exemple de la FFT de la vitesse maximale trouvée pour ( $n = 10$ ,  $\epsilon = 25$  %) - Figure de gauche, entourée -, constituant un faux signal Doppler (bas). Le vrai pic FFT correspondant à la salve Doppler est visible autour de 7 MHz, mais reste en dessous du bruit situé vers 50 MHz.

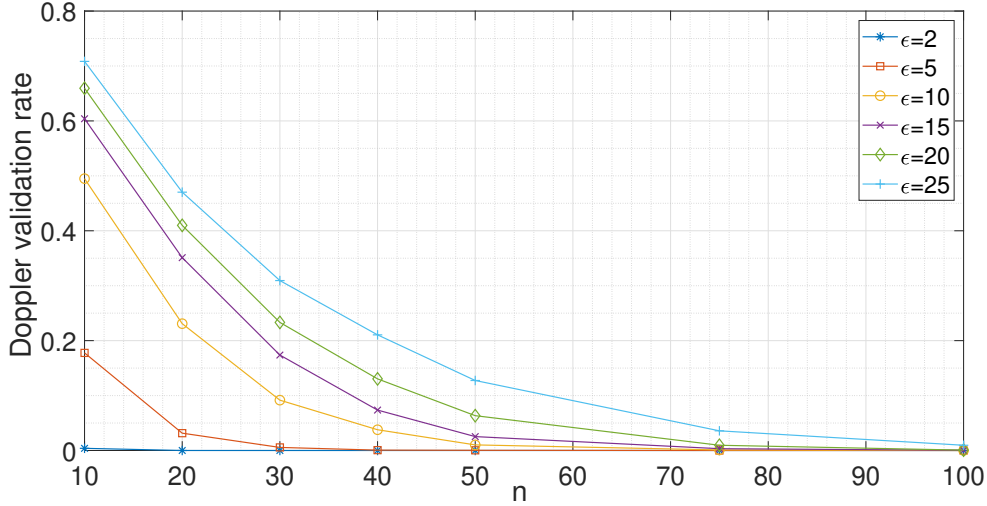


FIGURE IV.9 – Sensibilité du taux de validation des signaux Doppler au nombre minimum de franges  $n$  et à l’homogénéité spatio-temporelle  $\epsilon$  requis pour la validation d’un signal Doppler.

### IV.1.3 Évaluation du flux à partir de mesures locales

Pour évaluer les performances de la sonde Doppler, le débit global de liquide injecté est comparé au flux local de liquide intégré le long d’un diamètre de spray. Nous rappelons que le flux local est la contribution de chaque goutte détectée par la sonde au point de mesure :

$$j_L = \sum_i C_L(i)/T_t \quad (\text{IV.2})$$

où  $i$  comprend toutes les gouttes qui touchent la partie sensible de la sonde pendant la durée de la mesure  $T_t$ . Pour les gouttes dont la signature Doppler est valide, la corde est directement le produit du temps de résidence liquide et de la vitesse de la goutte (équation II.5). Sans Doppler valide, aucune vitesse ne peut être mesurée et seul le temps de résidence liquide est disponible. Dans ce cas, une solution est mise en place pour fournir une estimation de la vitesse. Nous suivons ici la routine proposée par Hong *et al.* [36] pour les sprays. Les cordes directement mesurées à partir de la vitesse de goutte sont corrélées avec le temps liquide selon une loi de puissance :

$$C_L(i) = a \cdot t_{L(i)}^b \quad (\text{IV.3})$$

avec un ajustement des constantes  $a$ ,  $b$ . Une valeur de corde est ensuite attribuée à chaque goutte sans vitesse à partir de cette loi puissance.

Le flux global  $Q$  est ensuite calculé comme l’intégration spatiale du flux local  $j_L(r)$  mesuré le long d’un diamètre de spray allant de  $-R_{max}$  à  $+R_{max}$  (cf. schéma en Figure IV.10) :

$$Q = \pi \int_{-R_{max}}^{+R_{max}} j_L(r) \cdot r \cdot dr \quad (\text{IV.4})$$

où  $r$  est la position radiale de la sonde mesurée depuis le centre du spray. L’approximation de l’intégrale à l’aide de la méthode des trapèzes (équation IV.5) permet de calculer le flux global à partir des flux locaux collectés sur un diamètre de spray, avec un intervalle constant entre les points de mesure  $\Delta R = R_{max}/N$  :

$$Q \approx \frac{\pi \cdot R_{max}}{2N + 1} \sum_{i=1}^{2N} \{j_L(R_i) \cdot R_i + j_L(R_{i+1}) \cdot R_{i+1}\} \quad (\text{IV.5})$$

Dans l’équation ci-dessus,  $2N + 1$  points de mesure allant de  $-R_{max}$  à  $+R_{max}$  sont considérés. Un pas  $\Delta R$  égal à  $1 \pm 10^{-1} \text{ mm}$  a été choisi. Afin de minimiser les incertitudes

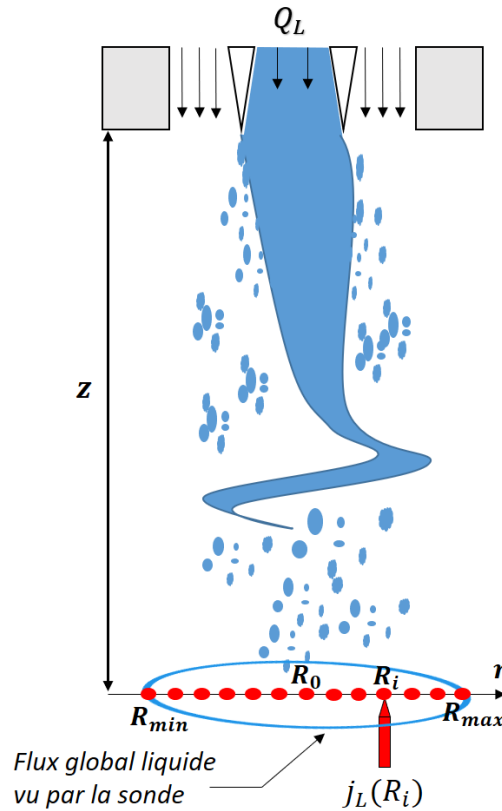


FIGURE IV.10 – Illustration de mesures du flux local en différentes positions radiales  $R_i$  du spray pour l'estimation du flux global.

lors de l'intégration, il est important de déterminer avec précision le centre du spray où le flux local atteint son maximum. Pour cela, quelques données sont d'abord collectées selon deux directions orthogonales perpendiculaires à l'axe du jet, et la localisation du flux maximal fournit la position de l'axe de symétrie du spray. En terme d'extension radiale, la distance à l'axe est progressivement augmentée jusqu'à ce que la contribution du flux local à la position  $R_{max}$  soit inférieure à 5% du flux global : ce critère définit l'étendue maximale de la mesure. Ces profils transversaux comprennent typiquement 15 à 32 mesures selon les conditions d'injection (comme discuté dans la suite, cf. IV.2.5).

## IV.2 Résultats

### IV.2.1 Détection et caractérisation de la phase liquide

Les expériences ont été réalisées à cinq débits gaz différents pour un débit liquide fixé  $Q_L = 20 \text{ L/h}$  (cf. Tableau IV.1). La sonde est située sur l'axe de symétrie du spray, à une distance axiale comprise entre 30 et 50  $\text{mm}$  selon les conditions de l'écoulement. Cette distance représente de deux fois la longueur intacte moyenne  $\langle L_I \rangle$  pour  $U_G = 32 \text{ m/s}$ , jusqu'à trois fois  $\langle L_I \rangle$  pour  $U_G = 283 \text{ m/s}$ . Les mesures de cette section sont basées sur des enregistrements d'une durée variant de 3 à 10 s. Le Tableau IV.1 fournit la fraction liquide et la fréquence moyenne d'arrivée des gouttes pour chaque expérience. Les deux quantités augmentent systématiquement avec  $Q_G$ . En particulier, la fréquence d'arrivée augmente d'un facteur 100 lorsque la vitesse gaz augmente d'environ une décade : ceci est dû au fait que la taille des gouttes diminue avec la vitesse gaz.

Les distributions de l'amplitude du signal telles que définies par l'équation IV.1 sont illustrées en Figure IV.11. Les amplitudes des signaux sont normalisées par la dynamique complète du signal  $SD$ , définie ici comme l'amplitude entre le niveau de gaz statique (c'est-à-dire l'amplitude gaz mesurée dans l'air) et l'amplitude minimale du niveau liquide

TABLE IV.1 – Conditions d’injection pour les mesures du flux global. Fraction liquide ( $\alpha_L$ ) et fréquence d’arrivée moyenne des gouttes ( $f_{arrival}$ ) correspondantes.

$Q_L$ (L/h)	$U_L$ (m/s)	$Q_G$ (L/min)	$U_G$ (m/s)	$\alpha_L$ –	$f_{arrival}$ (Hz)
20	0.28	300	32	0.0007	68
20	0.28	540	57	0.0023	370
20	0.28	800	85	0.0026	800
20	0.28	1667	177	0.0064	5900
20	0.28	2667	283	0.0060	4400

(voir Figure IV.4). La forme des distributions change légèrement avec le débit gaz. De façon globale, la proportion d’amplitudes complètes diminue lorsque  $Q_G$  augmente pour les plus grands débits de gaz considérés ( $Q_G > 600$  L/min), ce qui signifie que les signaux d’amplitudes partielles deviennent beaucoup plus fréquents à fort débit gaz. A  $Q_G = 2667$  L/min notamment, la probabilité d’obtenir un signal de pleine amplitude tombe à 1%. Ceci est la conséquence du manque de stabilité du niveau de gaz, comme le fait ressortir la Figure IV.2. En effet, plus la vitesse du gaz augmente et plus la fréquence d’arrivée des gouttes augmente, comme le souligne le Tableau 1. Lorsque cette dernière devient trop élevée, la pointe de la sonde ne sèche jamais complètement entre les impacts successifs des gouttes, ce qui induit de fortes fluctuations dans l’amplitude du signal correspondant à une pointe de sonde supposément immergée dans l’air. De plus, des gouttes plus petites impliquent plus d’impacts tangentiels, et donc une probabilité plus élevée de mouiller partiellement la sonde. Ces deux effets conduisent à de forts changements dans la distribution de l’amplitude du signal.

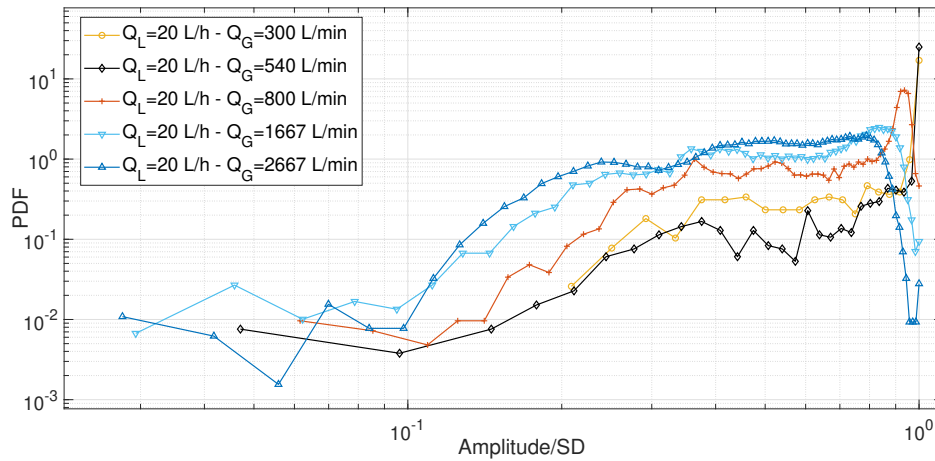


FIGURE IV.11 – Distributions des amplitudes de signaux normalisées constituant le signal brut, pour les conditions expérimentales détaillées dans le Tableau IV.1

Pour approfondir l’analyse des signaux bruts, il convient d’examiner la contribution de chaque classe d’amplitude au temps de résidence liquide total mesuré, ce qui revient à examiner leurs contributions à la concentration liquide. En effet, si les amplitudes partielles - disons inférieures à  $0,8 SD$  - sont complexes à détecter, il importe de quantifier la perte de fraction liquide qu’elles représentent. La Figure IV.12 fournit cette corrélation. Pour des débits gaz faibles à modérés (jusqu’à  $540$  L/min), les signaux d’une amplitude supérieure à  $0,8 SD$  contribuent respectivement à 86 et 96% de la concentration liquide totale. Mais lorsque le débit de gaz augmente, la contribution des amplitudes supérieures à  $0,8 SD$  diminue drastiquement : elle ne représente plus que 61% de la fraction liquide à  $Q_G = 800$  L/min, et tombe à 28% et 11% à  $Q_G = 1667$  et  $2667$  L/min respectivement. A l’inverse,

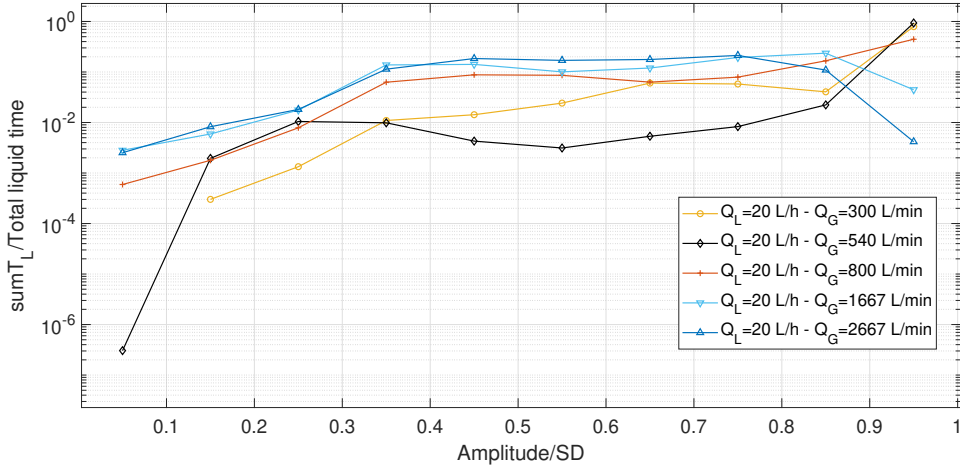


FIGURE IV.12 – Corrélation entre les amplitudes du signal et les temps de résidence liquide. Pour les conditions expérimentales figurant dans le Tableau IV.1

les signaux dont l'amplitude est comprise entre 0,3 et 0,8  $SD$  contribuent respectivement à 69% et 86% de la concentration liquide totale pour ces deux derniers débits. Ce résultat est d'une grande importance, car il prouve que pour effectuer des mesures fiables à des débits gaz élevés, la routine de détection de phase doit être capable d'identifier les signatures de gouttes possédant une amplitude aussi faible qu'environ 10% de la dynamique du signal.

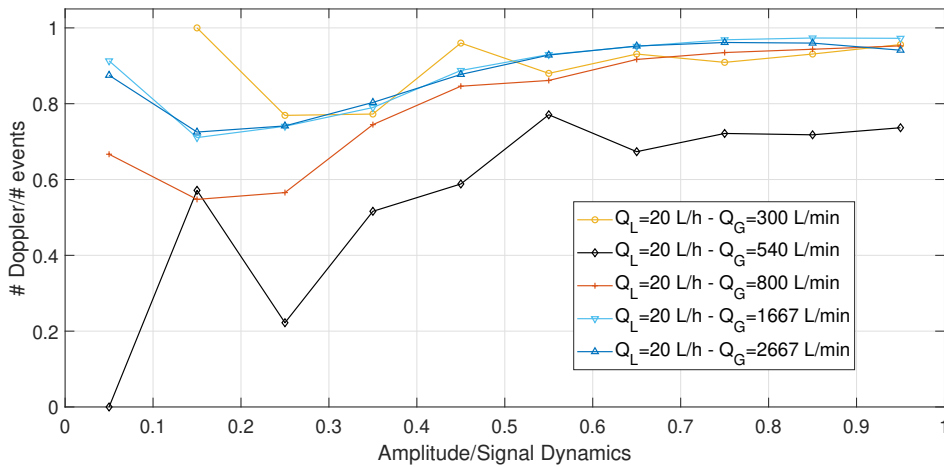


FIGURE IV.13 – Pourcentages de signaux possédant une signature Doppler par classe d'amplitude. Conditions expérimentales du Tableau IV.1

La question qui se pose ensuite est la corrélation possible entre amplitude de signal et présence d'une signature Doppler. La Figure IV.13 fournit le pourcentage de signaux pour lesquels un signal Doppler a été détecté, par classe d'amplitude. L'on constate la présence de signaux Doppler pour toute amplitude comprise entre 0,05 et 1  $SD$ . Ce résultat est valable pour tous les débits de gaz considérés ici, à l'exception des deux minimums observés pour  $Q_G = 540$  L/min (Amplitude/ $SD \approx 0,05$  et 0,25), dont l'origine reste inconnue. Bien qu'il y ait quelques fluctuations dans les résultats de la Figure IV.13, la tendance globale reste la même : il y a une forte probabilité (80 à 100%) de trouver un signal Doppler pour des amplitudes comprises entre 0,5  $SD$  et 1  $SD$ . En dessous de 0,5  $SD$ , la probabilité de trouver un signal Doppler diminue jusqu'à environ 55-60% selon les conditions d'écoulement. Par conséquent, les signatures de gouttes de toutes les amplitudes peuvent être exploitées pour les mesures de vitesse.

## IV.2.2 Mesure de la fraction liquide

L'évolution de la fraction liquide ( $\alpha_L$ ) selon la position radiale de la sonde est présentée en Figure IV.14, pour les débits de la Table IV.2. Elle est estimée d'après l'équation II.6.

La fraction liquide est maximale au centre du spray pour  $Q_G = 800 \text{ L/min}$ . Cependant, la diminution de la fraction liquide avec la position radiale est plus forte à fort débit gaz, ce qui indique que le spray est d'autant plus dispersé que le débit gaz est faible et que le débit liquide est important.

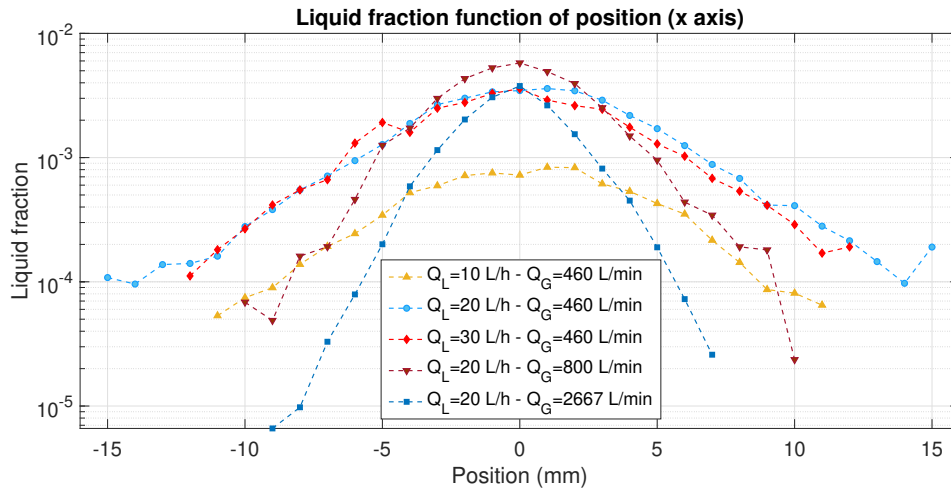


FIGURE IV.14 – Profils radiaux de la fraction liquide pour différents débits liquides et gaz, cf. Table IV.2

## IV.2.3 Mesures de la vitesse de gouttes

Cette section traite du comportement de la vitesse moyenne des gouttes (Figure IV.15, droite) et des distributions (Figure IV.15, gauche), avec les conditions d'injection mentionnées en Table IV.1. Comme attendu, la vitesse moyenne augmente de façon monotone avec la vitesse gaz. Plus intéressant, les distributions restent très similaires pour tous les débits gaz variés ici. De faibles variations surviennent tout de même. Les acquisitions à  $Q_G = 300 \text{ L/min}$  et  $Q_G = 540 \text{ L/min}$  ne présentent pas de vitesses inférieures à 0.4-0.5 la vitesse moyenne, contrairement aux débits gaz supérieurs. Et le plus faible débit gaz  $Q_G = 300 \text{ L/min}$  montre plus de vitesses maximales (environ trois fois  $\langle V \rangle$ ) que les débits supérieurs.

Le comportement de la vitesse moyenne des gouttes  $\langle V \rangle$  avec la position radiale est ensuite étudié, pour les conditions expérimentales indiquées en Table IV.2. Les résultats sont présentés en Figure IV.16. Différentes observations peuvent être faites. Premièrement, la vitesse moyenne augmente avec la vitesse gaz au centre du spray. Ce qui est consistant avec les résultats de la Figure IV.15 (gauche). Deuxièmement, une augmentation de la vitesse moyenne des gouttes jusqu'à une position radiale  $r \approx 2R_{max}/3$  peut être relevée pour tous les couples de vitesses. Cet effet est plus fort à vitesse gaz élevée. Par ailleurs, l'écart-type diminue avec la position radiale pour l'ensemble des conditions. Enfin, les valeurs de vitesse moyenne restent proches au centre du spray lorsque la vitesse gaz est maintenue constante ( $U_G = 48.8 \text{ m/s}$ ) et la vitesse liquide variée de 0,28 à 0,42 m/s. Cependant, lorsque cette dernière est réduite d'avantage ( $U_L = 0.14 \text{ m/s}$ ),  $\langle V \rangle$  augmente de 30 à 50% sur l'ensemble du diamètre de spray par rapport aux vitesses liquides plus élevées.



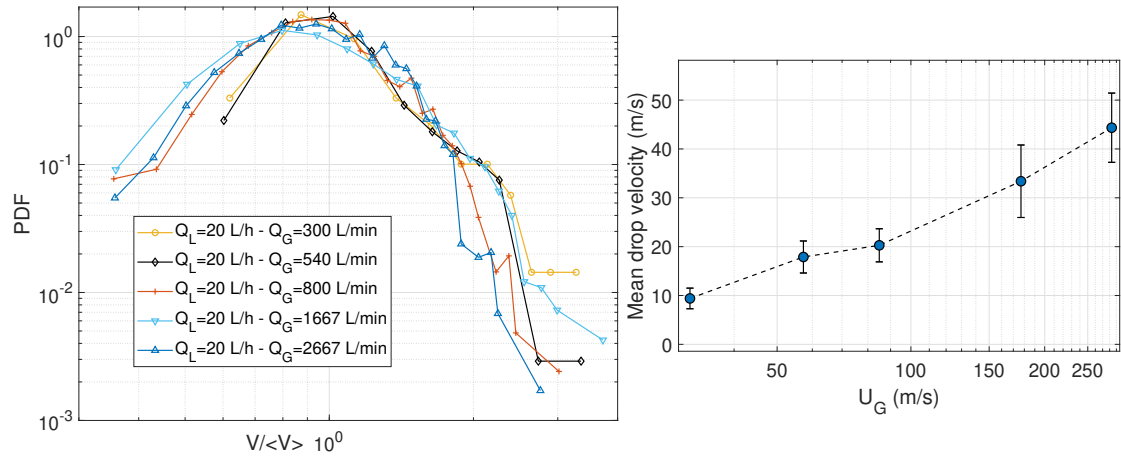


FIGURE IV.15 – Distributions des vitesses de gouttes normalisées par la moyenne (gauche), et évolution de la vitesse moyenne arithmétique des gouttes avec la vitesse gaz (droite). Les barres d'erreur correspondent à l'écart-type de la mesure. Les données ont été collectées au centre du spray et à une distance axiale  $z=30$  à  $50$  mm de l'injecteur.

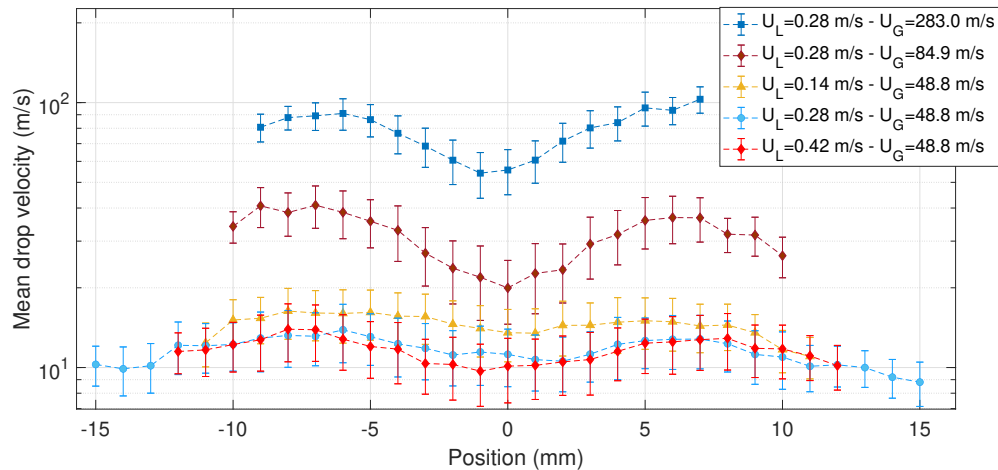


FIGURE IV.16 – Évolution de la vitesse moyenne des gouttes avec la position radiale de la sonde. Les barres d'erreur représentent l'écart-type. Les positions axiales de mesure sont fournies en Table IV.2.

#### IV.2.4 Mesures de cordes et tailles de gouttes

Une fois le temps de résidence liquide et la vitesse d'une goutte mesurés, sa corde peut être déduite d'après l'équation II.5. La Figure IV.17 présente l'évolution de la corde moyenne et des distributions de corde, en fonction de la vitesse d'injection gaz. Tant la corde moyenne que le diamètre de Sauter (évalué comme  $D_{32} = (3/2)C_{10}$ ) diminuent avec la vitesse gaz. De plus, l'écart-type de la corde diminue fortement avec  $U_G$ .

Les densités de probabilité de cordes introduites en Figure IV.17 (droite) montrent des allures similaires. Ce qui peut indiquer que les mécanismes de brisure qui conduisent à la formation des gouttes sont les mêmes sur la plage des vitesses gaz des présentes conditions expérimentales.

La Figure IV.18 expose le comportement du diamètre de Sauter des gouttes en fonction de la position radiale dans le spray (conditions expérimentales de la Table IV.2). La taille au centre diminue avec  $U_G$ , en accord avec les résultats de la Figure IV.17 (gauche) pour d'autres jeux de données. L'évolution de la taille avec la position radiale montre un comportement inverse à celui constaté pour les vitesses (Figure IV.16). En effet, à forte

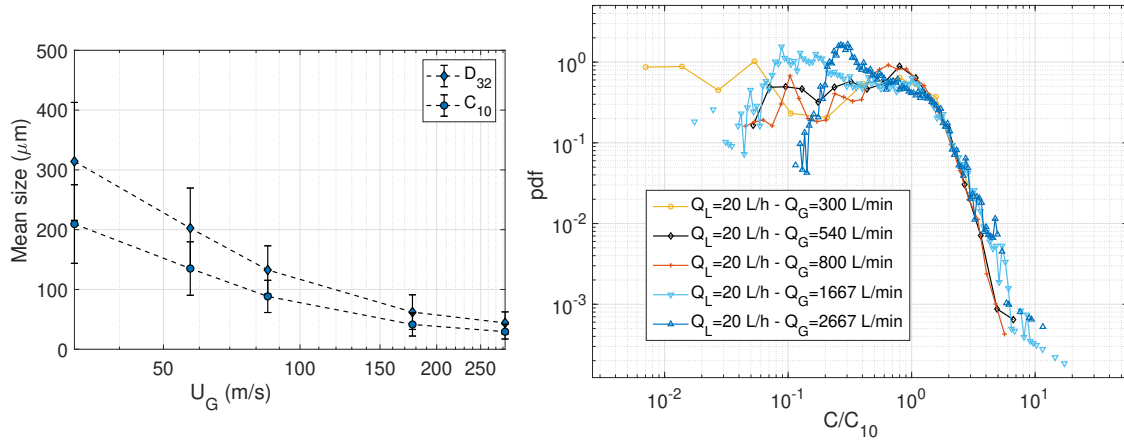


FIGURE IV.17 – Évolution de la corde moyenne et du diamètre de Sauter avec la vitesse gaz pour  $U_L = 0.28 \text{ m/s}$  (gauche). Distributions des cordes de gouttes normalisées par la moyenne (droite). Les barres d'erreur représentent l'écart-type. Pour ces mesures, la sonde est positionnée au centre du spray et à une distance axiale  $z=30$  à  $50 \text{ mm}$  de l'injecteur. Conditions expérimentales du Tableau IV.1.

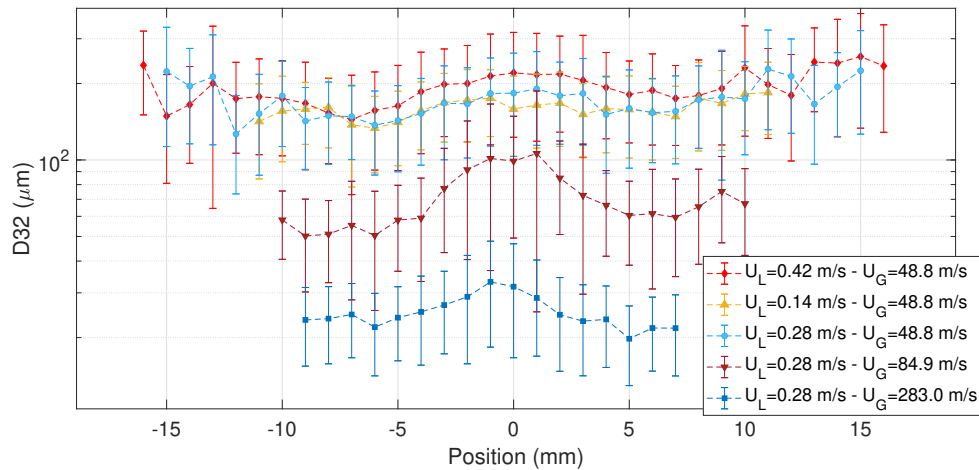


FIGURE IV.18 – Évolution du diamètre de Sauter avec la position radiale de mesure, pour les vitesses d'injection liquide et gaz de la Table IV.2. Les barres d'erreur représentent l'écart-type.

vitesse gaz ( $U_G = 85\text{-}283 \text{ m/s}$ ), la taille des gouttes est plus élevée au centre du spray. Cette différence de taille entre le centre et le bord de spray est moins importante pour les séries de mesures à plus faible vitesse gaz  $U_G = 49 \text{ m/s}$ . Ce résultat peut indiquer une plus forte contribution du mécanisme d'épluchage dans le spray à vitesse gaz élevée, ce qui conduit à un plus grand nombre de fines gouttes.

#### IV.2.5 Mesures du flux liquide pour la validation de l'instrument

Des mesures de flux global ont été réalisées pour différents débits liquide et gaz, en utilisant les traitements du signal pour la détection de gouttes et Doppler qui ont été présentés dans la partie IV.1. Les valeurs de flux sont calculées à partir de l'équation IV.5, suivant la méthode vue en section IV.1.3. Les résultats sont présentés en Table IV.2.

En comparant le flux vu par la sonde au débit liquide injecté, le premier est sous-estimé jusqu'à 8% à débit gaz moyen  $Q_G = 460 \text{ L/min}$ . La sous-estimation est légèrement plus

importante aux débits supérieurs (800 et 2667 L/min), de 17% et 14% respectivement, du fait des conditions d'écoulement rendant la détection de phase liquide difficile comme expliqué dans la partie IV.2.1. Étant donné que la mesure du flux global dépend à la fois de la mesure des vitesses et des temps liquides, les écarts modérés entre flux injecté et flux mesuré par l'instrument démontrent la bonne fiabilité de la sonde sur les plages de débits d'injection testées.

TABLE IV.2 – Mesures du flux liquide pour différents couples de débits liquide et gaz.  $Q_T$  est le débit estimé à partir des mesures de sonde sur un diamètre de spray.  $Q_{left}$  et  $Q_{right}$  sont les débits trouvés sur chaque demi-disque du spray (de  $r = -R_{max}$  à 0 et de 0 à  $+R_{max}$  respectivement). Le pas entre chaque position de mesure radiale est de 1 mm.  $z$  est la distance de mesure axiale, entre la sortie de l'injecteur et le point de mesure.

$Q_L$ (L/h)	$U_L$ (m/s)	$Q_G$ (L/min)	$U_G$ (m/s)	$Q_{left}, Q_{right}$ (L/h)	$Q_T$ (L/h)	$Q_T/Q_L$ –	Positions sonde [ $R_{max}, z$ ](mm)
10	0.14	460	48	5.1, 4.6	9.7	0.97	(11, 30 $\approx 2 \times L_I$ )
20	0.28	460	48	9.7, 10.1	19.8	0.99	(15, 30 $\approx 1.5 \times L_I$ )
30	0.42	460	48	13.7, 13.8	27.5	0.92	(16, 38 $\approx 1.5 \times L_I$ )
20	0.28	800	85	8.8, 7.8	16.6	0.83	(10, 30 $\approx 1.5 \times L_I$ )
20	0.28	2667	283	9, 8.2	17.2	0.86	(8, 30) <sup>1</sup>

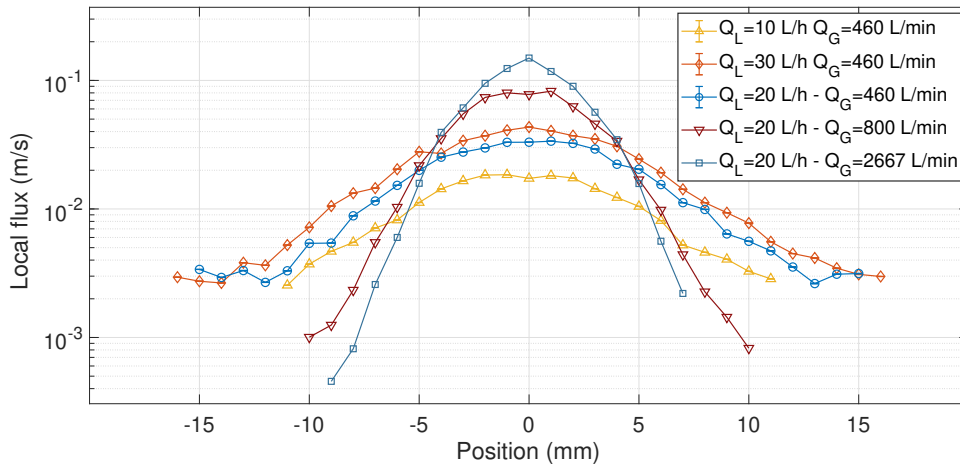


FIGURE IV.19 – Profils radiaux du flux local pour différents couples de débits (cf. Table IV.2)

Les profils radiaux du flux local sont donnés en Figure IV.19. Il peut être observé qu'à débit de gaz constant, d'une part le flux local diminue avec le débit liquide sur l'ensemble des positions radiales, mais également que les profils radiaux présentent des tendances similaires. A débit liquide fixé ( $Q_L = 20$  L/h), le flux local augmente avec le débit gaz au centre du spray, mais diminue pour  $r > 5$  mm. En d'autres termes, le profil d'écoulement est plus étendu à  $Q_G$  modéré. Cela indique que l'angle de spray peut être fortement réduit par l'augmentation du débit de gaz.

## IV.2.6 Évaluation du flux liquide, seconde méthode

Dans la section précédente, nous avons évalué le flux global à partir de profils radiaux du flux local  $j_L$ , évalué comme le rapport de la somme des cordes de gouttes interpolées et du temps total de mesure (cf. équation IV.2). Cette méthode a montré la fiabilité des mesures de flux pour les conditions d'injection testées. Une seconde méthode d'évaluation du flux local est basée sur l'hypothèse que les tailles et vitesses de gouttes ne sont pas

corrélées. Dans ce cas, le flux local est le produit de la fraction liquide et de la vitesse moyenne arithmétique des gouttes (Cartellier [10]) :

$$j_L = \alpha_L V \quad (IV.6)$$

Dans l'estimation présentée ici, la moyenne  $V$  a été évaluée sur les signaux Doppler validés uniquement. Les flux locaux sont de nouveau calculés avec cette méthode, pour les données des profils radiaux de flux vus dans la section IV.2.5 précédente. Après intégration, il apparaît que le flux global vu par la sonde avec cette méthode est moindre qu'avec la première, pour trois des cinq couples de débits d'injection. Les comparaisons des profils de flux locaux estimés par les deux méthodes sont proposées en Figure IV.20.

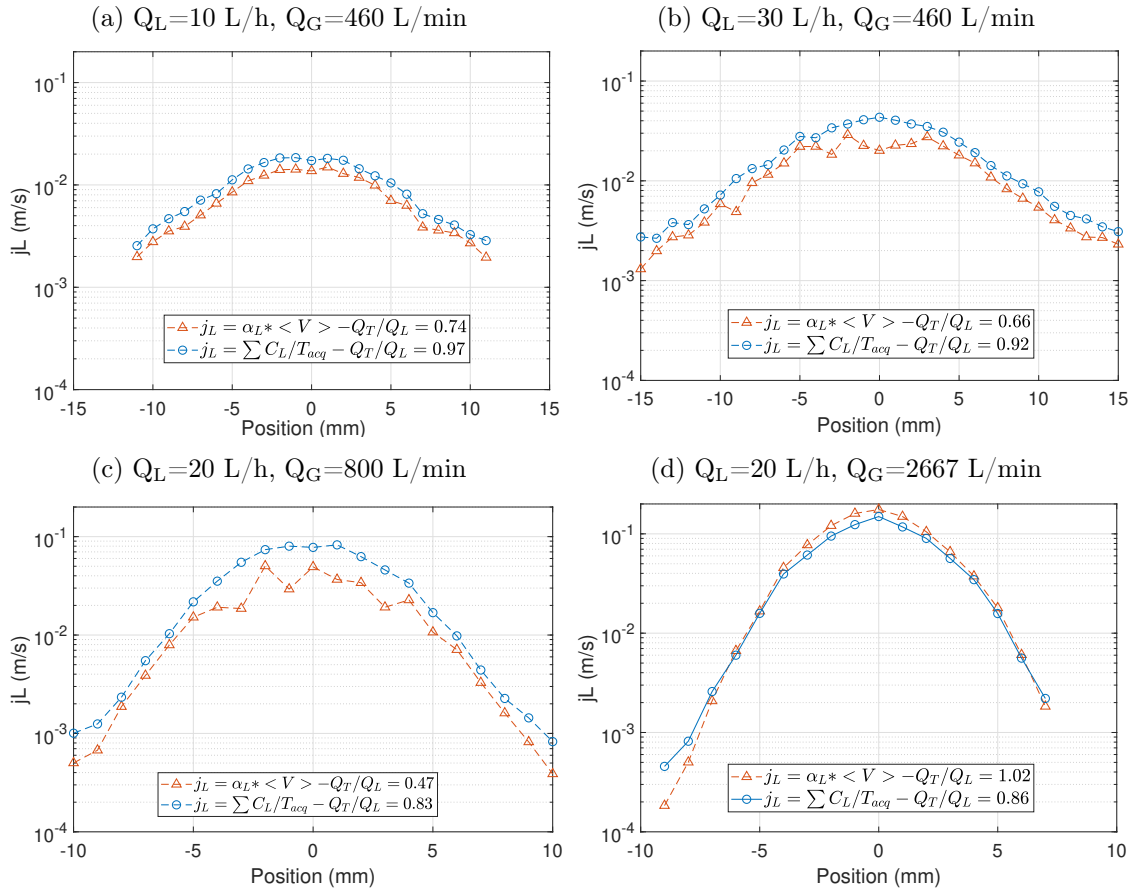


FIGURE IV.20 – Flux locaux mesurés sur un diamètre de spray par deux méthodes : d'après l'équation IV.2 (bleu), et d'après l'équation IV.6 (rouge).  $Q_T/Q_L$  est le rapport entre flux estimé et débit injecté.

Ces résultats révèlent que :

- pour les couples de débits des Figures a-c, le flux local est toujours sous-estimé de 25 à 150% lorsqu'il est évalué suivant l'équation IV.6. Et le flux global résultant de l'intégration des flux locaux est sous-estimé de 25 à 50%.
- à fort débit gaz  $Q_G = 2667$  L/min (Figure IV.20d), les deux méthodes présentent des écarts sur les flux locaux relativement faibles (au plus 30%). Et les flux globaux retrouvés sont proches.

La compréhension de ces sous-estimations du flux lorsqu'il est calculé suivant l'équation IV.6 fait l'objet d'investigations. Deux causes sont probables. La première est que les tailles et vitesses de gouttes sont corrélées pour les débits d'injection étudiés, l'équation IV.6 n'est alors plus valide dans ce cas. La vérification de cette hypothèse implique de réaliser des corrélations tailles-vitesses de gouttes, ce qui nécessite des acquisitions avec un plus grand nombre de gouttes détectées.

La seconde hypothèse est que les signaux Doppler validés sont corrélés à certaines classes de temps liquides des inclusions de gouttes. Étant donné que la vitesse moyenne  $V$  (équation IV.6) est calculée uniquement à partir des signaux Doppler valides, l'évaluation du flux peut alors être biaisée. Les premières analyses semblent montrer que cette hypothèse est vérifiée pour les couples de débits pour lesquels l'estimation du flux global est mauvaise (Figures IV.20a-c), les plus grands temps liquides ont un taux de validation élevé, ce qui n'est pas le cas des faibles temps liquide. Tandis que pour l'acquisition à fort débit gaz où les deux méthodes donnent une bonne estimation du flux (Figure IV.20d), le taux de validation des signaux Doppler est constant pour les différentes classes de temps liquides. Ces investigations sont à poursuivre, elles nécessitent plus de temps d'analyse.

### IV.3 Conclusion

Une nouvelle technique pour la mesure de vitesses et tailles de gouttes dans les sprays a été proposée, combinant une détection de phase efficace à une mesure des vitesses basée sur l'effet Doppler renvoyé par une phase gaz-liquide en approche. Ces mesures simultanées sont rendues possibles par la géométrie conique de l'extrémité de la sonde optique. L'analyse de signaux bruts acquis sous différentes conditions d'injection, a montré que toute la gamme d'amplitude de signaux présente des signatures Doppler. Lorsque le spray devient plus dense en revanche, le temps de démouillage de l'extrémité de la sonde est incomplet et le signal retourné entre deux impacts de gouttes fluctue fortement, rendant la détection de gouttes complexe. Un algorithme spécifique a été développé pour pallier à ce problème dans de telles conditions de mesures (en l'occurrence pour de fortes vitesses gaz), et permet l'identification des signaux sur toute la gamme d'amplitude. Combiné à une partie sensible de sonde de faible longueur ( $6 \mu m$ ) pour déceler les faibles inclusions, avec un traitement des signaux Doppler optimisé, la mesure des vitesses et des cordes de gouttes est rendue possible sur de larges plages de vitesses d'injection gaz, de 20 à 280 m/s. Les estimations du flux global réalisées à partir de l'intégration des flux locaux sur un diamètre de spray ont montré la fiabilité de la sonde optique Doppler par un bon accord avec les valeurs de débit liquide injecté (accord entre 83 et 99%). Ces résultats sont encourageants, c'est pourquoi nous utiliserons cette technique de mesure pour la caractérisation du spray avec tensioactif dans le chapitre suivant.

# Chapitre V

## Évolution des caractéristiques du spray

Ce chapitre est consacré à l'effet des tensioactifs sur le spray. Le choix des tensioactifs sera restreint au SDS ( $c=1$  cmc) et  $C_{12}$ TAB ( $c=2$  cmc), car ce sont ces concentrations qui ont montrées le plus d'effets sur la structure du jet (cf. chapitre III). Le  $C_{16}$ TAB à une concentration de 2 cmc sera également étudié, afin de vérifier si comme attendu ce candidat n'influe pas sur la formation de gouttes. Trois techniques de mesures seront utilisées pour la caractérisation de la taille des gouttes formées : l'imagerie rapide, la diffraction laser et enfin la sonde optique Doppler. Dans un premier temps, nous présenterons des résultats de distributions de tailles de gouttes obtenues par caméra rapide puis par diffraction laser, avec  $C_{12}$ TAB. La méthode de diffraction laser sera ensuite employée pour évaluer la dépendance du diamètre des gouttes ( $D_{10}$  et  $D_{32}$ ) à la vitesse gaz et à la distance axiale à l'injecteur pour les trois tensioactifs. La dernière partie sera consacrée aux résultats de caractérisation du spray acquis par sonde optique Doppler avec le tensioactif  $C_{12}$ TAB. Nous étudierons en particulier les différences de distributions de cordes et de vitesses induites par l'ajout des tensioactifs, ainsi que le flux local au centre du spray.

### V.1 Considérations préliminaires

#### V.1.1 Choix de la distance de mesure axiale

Il a été vu dans le chapitre III que la longueur de jet liquide ( $L_I$ ) varie d'une part avec les vitesses d'injection, mais aussi avec l'ajout des tensioactifs SDS et  $C_{12}$ TAB. Par ailleurs, la longueur de jet fluctue dans le temps autour de sa valeur moyenne  $\langle L_I \rangle$ . Afin d'obtenir des statistiques non biaisées par la présence du jet liquide, il s'agit donc de situer la zone de mesure à une distance axiale  $z$  (depuis la sortie de l'injecteur) supérieure à la longueur de jet maximale, comme ce qui a été fait avec la sonde optique dans le chapitre précédent. Étant donné que la longueur intacte moyenne diffère avec et sans dopage, deux choix sont alors possibles : réaliser la mesure avec tensioactif à la même distance axiale qu'en eau pure, ou bien réaliser la mesure à une distance proportionnelle à la longueur de jet moyenne avec tensioactif. Dans ce second cas, la distance de la mesure avec tensioactif sera - pour une même vitesse gaz - différente de celle en eau pure. Les deux choix possibles sont illustrés en Figure V.1. Dans un objectif comparatif, il nous semble faire sens de confronter les caractéristiques du spray avec et sans tensioactif à position de mesure identique, dans un premier temps. Dans une première approche, la distance de mesure sera donc choisie pour chaque vitesse d'injection gaz proportionnelle à la longueur de jet moyenne observée en eau pure.

Les mesures de distributions de tailles de gouttes par imagerie rapide et sonde optique Doppler seront donc réalisées à des distances  $z=4\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ , afin d'être suffisamment éloigné du jet liquide de sorte que même l'augmentation de la longueur de jet avec tensioactif

n'atteigne pas la distance de mesure.

L'imagerie rapide sera en outre utilisée pour comparer les tailles de gouttes à distance homothétique de la longueur intacte moyenne de l'eau pure et avec tensioactif. Deux positions seront donc choisies pour les mesures par imagerie avec C<sub>12</sub>TAB : une première située à quatre fois la longueur de jet moyenne sans tensioactif, soit  $4\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$  (Figure V.2, noir), une seconde proportionnelle à la longueur de jet avec tensioactif, soit  $4\langle L_I \rangle_{\text{tens}}$  (orange).

Nous utiliserons également la diffraction laser pour caractériser l'évolution axiale du spray : pour chaque fluide et vitesse gaz, les tailles de gouttes seront collectées sur une large plage de distances à l'injecteur, allant de 0,5 à 4 fois  $\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ . Les mesures aux distances inférieures à  $\langle L_I \rangle$  permettront de mettre en évidence la présence du jet liquide. En effet, le volume fluide contenu dans le jet encore intact est bien supérieur au volume des particules arrachées. De fait, nous pouvons nous attendre à une plus grande taille moyenne mesurée par l'instrument pour des distances axiales inférieures à la longueur de jet.

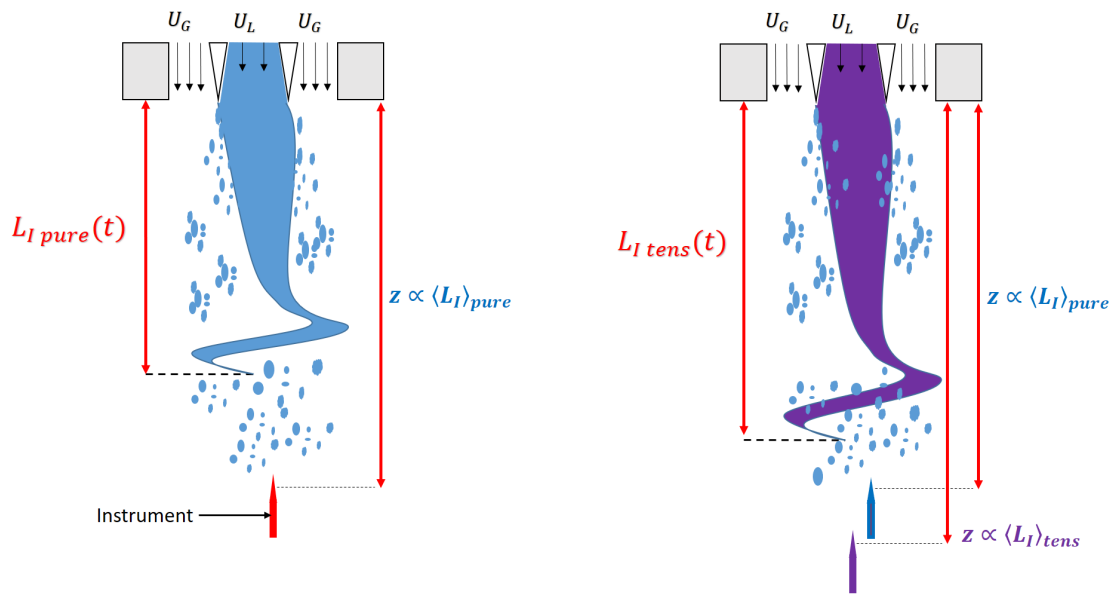


FIGURE V.1 – Illustration des deux choix possibles pour la distance de mesure axiale, dans le but de comparer le spray avec et sans tensioactif (droite et gauche respectivement).

La Figure V.2 situe pour le couple de vitesses  $U_L=0,28$  m/s,  $U_G=48$  m/s les différentes positions axiales des trois instruments dans le spray, et montre également l'étendue de la mesure radiale propre à chacun. La sonde optique est indiquée par une croix car c'est une mesure ponctuelle. Concernant le spraytech, seule la plus grande distance est illustrée par souci de clarté. La largeur du champ vu par la caméra a été choisie la plus grande possible, mais reste restreinte compte tenu du placement très proche du spray nécessaire pour visualiser les gouttes. Cette restriction devra être prise en compte dans l'interprétation des résultats. Il peut être remarqué sur la Figure V.2 que la hauteur de fenêtre de la caméra a été choisie identique au diamètre du volume de mesure Spraytech, initialement dans le but de comparer les distributions de tailles données par les deux instruments. Cependant, les deux techniques diffèrent en plusieurs points :

- la largeur de la fenêtre de mesure de la caméra est limitée à  $40$  mm, tandis que le Spraytech capture toute la largeur du spray (cf. Figure V.2). En utilisant les mesures de l'angle de spray basées sur l'amplitude radiale de *flapping* en bout de jet (cf. Figure III.3.2), nous savons que celui-ci varie pour de l'eau pure de  $10$  à  $30^\circ$  environ pour les conditions expérimentales présentes. A une distance de mesure axiale  $z=4\langle L_I \rangle=[88-184$  mm], l'étendue radiale des gouttes varie donc de  $30$  à  $100$  mm selon les vitesses d'injection. L'étendue radiale de la mesure par caméra est de

- seulement  $20\text{ mm}$ , et ne permet pas de capturer l'ensemble du spray. Cependant, les profils de flux de gouttes introduits dans le chapitre IV (Figure IV.19) montraient que l'essentiel du flux global est présent au centre du spray (i.e. pour  $r < 10\text{ mm}$ ). La perte d'information au delà de  $r = 20\text{ mm}$  par imagerie devrait donc être faible.
- la résolution de la caméra est de  $39\ \mu\text{m}$  par pixel, tandis que le diamètre minimal pouvant être détecté par diffraction laser est de  $2\ \mu\text{m}$ . Toutes les gouttes de tailles inférieures à  $39\ \mu\text{m}$  ne peuvent donc pas être mesurées par imagerie, ce qui constitue une limite importante de cette technique.
  - la taille de goutte maximale détectable avec le Spraytech est de  $2500\ \mu\text{m}$ , tandis que l'imagerie ne présente pas cette limite.

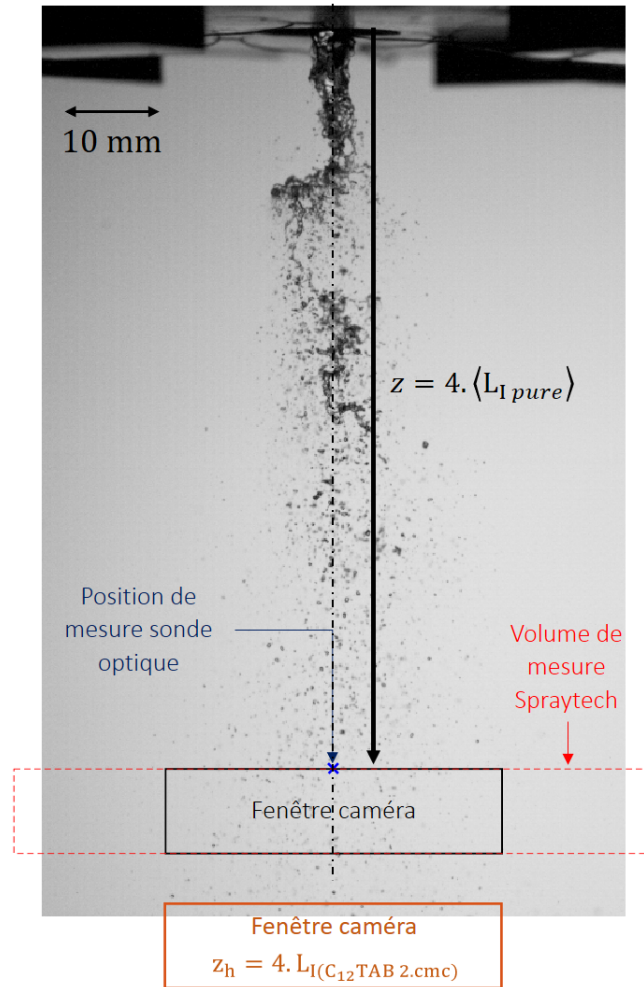


FIGURE V.2 – Zones de capture optique de chaque instrument tracées à l'échelle, pour les mesures réalisées dans ce chapitre à  $U_L=0,28\text{ m/s}$ ,  $U_G=48\text{ m/s}$ . Celles du spraytech (pointillés rouge) et sonde optique (croix bleu) sont choisies identiques en eau pure et avec  $C_{12}TAB$ . Seule la plus grande distance axiale de mesure est indiquée pour le Spraytech, d'autres mesures sont effectuées à des distances inférieures à celle affichée. Les mesures par caméra sont réalisées à distance identique en eau et  $C_{12}TAB$  (fenêtre en traits pleins noirs) mais également à distance homothétique de la longueur intacte moyenne (non représentée ici). Pour les valeurs de longueur intacte moyenne, se référer à la Figure III.19.

### V.1.2 Statistiques de gouttes

Les instruments utilisés dans ce chapitre permettent d'obtenir des distributions statistiques de tailles de gouttes, c'est-à-dire une probabilité d'apparition pour chaque classe de taille. La taille est une caractéristique essentielle de la morphologie des gouttes. Cependant,



il existe de nombreuses façons de la mesurer. C'est pourquoi avant d'introduire les résultats de tailles obtenus par les différentes techniques, nous présentons d'abord la granulométrie propre à chaque technique de mesure, et notamment la notion de diamètre équivalent :

- la diffraction laser fournit un diamètre de sphère équivalent en volume, évalué à partir de la surface projetée de chaque particule. La relation entre volume et diamètre équivalent de goutte est :

$$V = \frac{\pi}{6} d_V^3 \quad (\text{V.1})$$

Dans la suite du chapitre, les notations  $D_{V10}$  et  $D_{V32}$  seront relatives aux diamètres de gouttes moyens obtenus par cette technique, qui sont calculés à partir d'une distribution de tailles en fraction du volume liquide total mesuré. La mesure des tailles de particules est en effet sensible à la surface interceptée par le faisceau laser, mais les diamètres de gouttes retournés par l'instrument sont basés sur l'évaluation d'un volume de sphère.

- l'imagerie donne un diamètre de sphère équivalent en surface :

$$S = \frac{\pi}{4} d_S^2 \quad (\text{V.2})$$

- la sonde optique ne retourne pas directement un diamètre de goutte mais la corde (cf. équation II.5). Il est possible d'obtenir le diamètre moyen à partir d'une distribution de cordes sous certaines hypothèses. La démonstration est donnée en Annexe B.3 pour des inclusions sphériques.

Une distribution statistique peut être collectée en un point fixe pendant un certain temps (cas de la sonde optique), la moyenne est temporelle. Ou bien instantanée sur un volume de contrôle (cas de la diffraction laser et de l'imagerie), la moyenne est alors spatiale.

La probabilité en nombre d'obtenir une goutte de taille  $d(i)$  est :

$$P_N(i) = \frac{N(i)}{N_t} \quad (\text{V.3})$$

avec  $N(i)$  le nombre de gouttes de la classe  $i$ ,  $N_t$  le nombre total de particules. La probabilité en volume d'obtenir une goutte de taille  $d(i)$  est

$$P_V(i) = \frac{V(i)}{V_t} \quad (\text{V.4})$$

avec  $V(i)$  le volume de gouttes de la classe  $i$ ,  $V_t$  le volume total de particules.

Et l'on peut obtenir les diamètres caractéristiques de la distribution. Notamment, le diamètre arithmétique moyen :

$$D_{10} = \sum_i P(i) d(i) \quad (\text{V.5})$$

Ou le diamètre de Sauter (SMD), qui correspond à un rapport volume-surface de goutte :

$$D_{32} = \frac{\sum_i P(i) d(i)^3}{\sum_i P(i) d(i)^2} \quad (\text{V.6})$$

L'on connaît par ailleurs la relation entre nombre et volume de gouttes de même classe  $d(i)$  :

$$V(i) = \frac{\pi d(i)^3}{6} N(i) \quad (\text{V.7})$$

En associant les équations V.3-V.7, l'on obtient la relation entre distribution en volume et en nombre :

$$P_V(i) = \frac{d(i)^3 P_N(i)}{\sum d(i)^3 P_N(i)} \quad (\text{V.8})$$

Et la distribution de volume à nombre est :

$$P_N(i) = \frac{P_V(i)/d(i)^3}{\sum P_V(i)/d(i)^3} \quad (\text{V.9})$$

## V.2 Images du spray

Les images du spray introduites dans le chapitre III montraient déjà des effets de certains tensioactifs sur les tailles de gouttes. C'est pourquoi nous avons réalisé les premières analyses de tailles de gouttes par imagerie, avec le C<sub>12</sub>TAB qui a montré le plus d'effets sur la structure du jet. Les Figures V.3 et V.4 proposent des images du jet liquide et du spray avec différents fluides, à faible vitesse gaz  $U_G=24$  m/s (Figure V.3) et à vitesse plus élevée  $U_G=40$  m/s (Figure V.4). Les images du spray avec les différents tensioactifs pour d'autres vitesses gaz sont disponibles dans la partie III.2 du chapitre III. Les images semblent montrer que le SDS et le C<sub>12</sub>TAB génèrent plus de fines gouttes que l'eau pure et le C<sub>16</sub>TAB.

## V.3 Granulométrie par imagerie

Nous présentons maintenant les mesures de tailles issues de l'imagerie rapide. La vitesse gaz a été variée sur la plage 24-49 m/s, où les effets du C<sub>12</sub>TAB sur la structure du jet sont maximaux. La limite de taille de goutte inférieure que l'on peut détecter par imagerie est de  $40 \mu m$ , ce qui correspond à la résolution de l'image. La profondeur et la hauteur du champ de la caméra sont fixées à 10 mm. Le temps d'exposition est de  $35 \mu s$ . La fréquence et la durée de l'acquisition sont de 50 images par seconde pendant 1 minute. 3000 images ont donc été traitées, permettant la détection de 40 000 à 300 000 gouttes par acquisition. Aussi, un écart temporel minimal entre chaque image doit être respecté afin de ne pas capturer la même particule sur deux images successives. Connaissant la vitesse moyenne des gouttes pour chaque condition de mesure à partir des données de sonde optique (Figure IV.15), ainsi que la hauteur du champ de l'image, nous pouvons estimer le temps moyen que met une goutte à traverser le champ de la caméra verticalement. Pour des vitesses gaz  $U_G=24-49$  m/s, ce temps est compris entre  $1,7 \cdot 10^{-3}$  s et  $15 \cdot 10^{-3}$  s, ce qui implique de ne pas dépasser une fréquence d'acquisition maximale d'environ 600 Hz. Ici, la fréquence est de 50 Hz, ce qui assure de mesurer des particules différentes d'une image à la suivante. Des images d'acquisitions sont proposées en Figure V.5, pour une vitesse gaz  $U_G=40$  m/s.

Le Tableau V.1 fournit le nombre de gouttes détectées pour chaque acquisition, et met en évidence que pour un même nombre d'images traitées, le nombre de gouttes générées par l'atomisation avec C<sub>12</sub>TAB est systématiquement supérieur au cas de l'eau pure d'un facteur significatif 1,5 à 2,5. Ce résultat est une première indication que le tensioactif C<sub>12</sub>TAB impacte la taille des gouttes.

TABLE V.1 – Nombre de gouttes détectées pour chaque acquisition.

	$U_G=24$ m/s	$U_G=40$ m/s	$U_G=49$ m/s
Eau pure	39 000	190 000	240 100
C <sub>12</sub> TAB $z = 4 \cdot \langle L_I \rangle_{Pure}$	92 400	324 000	360 300
C <sub>12</sub> TAB $z = 4 \cdot \langle L_I \rangle_{C_{12}TAB}$	107 300	285 000	330 000

Les PDF de tailles en nombre sont ensuite présentées en Figure V.6. Comme indiqué en Figure V.2, la distance de mesure  $z$  correspond à la hauteur entre la sortie de l'injecteur et le bord supérieur du champ de la caméra. La moyenne et l'écart-type de chaque acquisition convergent dans un intervalle de 1%.

Si l'on compare les différentes distributions entre elles, nous observons que :

- Aucune différence significative n'est à relever entre les distributions du C<sub>12</sub>TAB aux distances proportionnelles à  $\langle L_I \rangle_{Pure}$  (jaune) et à  $\langle L_I \rangle_{C_{12}TAB}$  (rouge), pour les trois vitesses gaz.
- Entre l'eau pure (bleu) et le C<sub>12</sub>TAB à distance de mesure identique (jaune), un plus grand nombre de particules de grandes tailles (supérieures à  $700 \mu m$  environ) est présent avec C<sub>12</sub>TAB pour les vitesses gaz  $U_G=40$  et  $49$  m/s.

- Les tailles maximales générées en eau pure sont d'environ  $2500 \mu m$  pour les trois vitesses gaz, tandis qu'elles sont de  $6000 \mu m$  avec  $C_{12}TAB$  à  $U_G=24$  m/s, et de  $3000 \mu m$  pour  $U_G=40$  et  $49$  m/s.

Le Tableau V.2 synthétise les différences constatées entre les distributions :

TABLE V.2 – Tableau récapitulatif des écarts constatés entre les distributions de tailles de gouttes obtenues pour de l'eau pure et du  $C_{12}TAB$  ( $c=2$  cmc), par imagerie.

PDF	$40 \lesssim D \lesssim 700 \mu m$	$D \gtrsim 700 \mu m$
$C_{12}TAB$ $z=4 \langle L_I \rangle_{Pure}$	$\approx$	> pdf eau pure
$C_{12}TAB$ $z=4 \langle L_I \rangle_{C_{12}TAB}$	$\approx$	> pdf eau pure

Les images de la Figure V.7 donnent également un exemple des différences de tailles de gouttes en eau pure et avec  $C_{12}TAB$ , pour une vitesse gaz  $U_G=40$  m/s. De grandes particules sont effectivement présentes avec  $C_{12}TAB$ , qui ne sont pas sphériques, et l'on relève également la présence de bulles. Le traitement d'image ne détecte à priori pas les bulles car le gradient de niveau de gris de l'interface est trop faible. D'autre part, ces bulles sont rares.

Nous avons vu dans le chapitre III que l'ajout de  $C_{12}TAB$  présente la particularité de réduire la fréquence de brisure du jet liquide pour les vitesses d'injection utilisées ici. Un plus grand nombre total de gouttes est mesuré avec  $C_{12}TAB$  (Tableau V.1) comparé à l'eau pure, ainsi qu'un plus grand nombre de grandes tailles, tandis que les distributions restent inchangées pour les faibles tailles. L'accroissement du nombre total de gouttes mesuré avec  $C_{12}TAB$  est donc dû aux grandes tailles. Sachant que le jet est brisé moins fréquemment avec dopage, il est probable que le flux de gouttes issues de la brisure soit différent et que les gouttes provenant de la brisure soient également plus grandes. Nous reviendrons sur ce point lorsque les résultats de tailles de gouttes par sonde optique seront présentés.

Par ailleurs, les diamètres de gouttes moyens sont proches entre eau pure et  $C_{12}TAB$ . Mais sans la mesure des tailles inférieures à  $40 \mu m$ , ces moyennes n'ont probablement pas de sens physique. Nous verrons ce qu'il en est avec les autres techniques de mesure par la suite.

Les mesures de tailles de gouttes par imagerie apportent donc des résultats préliminaires pour la granulométrie en eau pure et avec  $C_{12}TAB$ . Tout d'abord, nous avons vu que pour un même temps d'acquisition un nombre significativement plus grand de larges gouttes ( $D > 700 \mu m$ ) qu'en eau pure est obtenu en présence de  $C_{12}TAB$ . De plus, des grandes tailles sont générées par le  $C_{12}TAB$  qui n'existent pas en eau pure ( $D > 2000 \mu m$ ), résultantes probablement de la réduction de la fréquence de brisure du jet liquide avec ce tensioactif.

Un résultat supplémentaire est la comparaison entre distributions de tailles avec  $C_{12}TAB$ , à distance de mesure axiale proportionnelle à la longueur de jet moyenne de l'eau pure, et proportionnelle à la longueur de jet moyenne avec tensioactif. A vitesse d'injection égale, il n'apparaît pas de différence significative entre les deux distances de mesure. Cependant, la technique d'imagerie utilisée ici est principalement limitée par une résolution insuffisante pour mesurer les gouttes de tailles inférieures à  $40 \mu m$ . C'est pourquoi nous utilisons ensuite la diffraction laser, qui permet la détection de gouttes sur une gamme de diamètres allant de  $2$  à  $2500 \mu m$ .

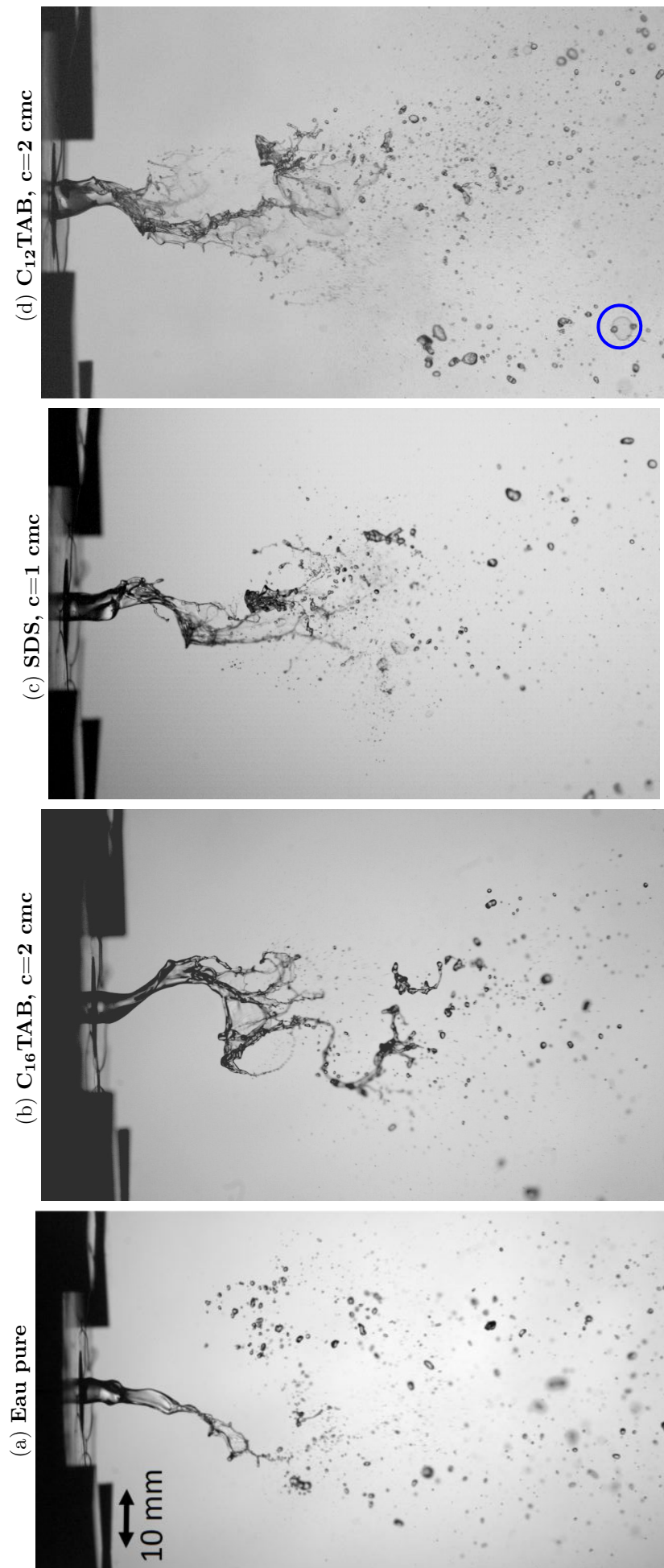


FIGURE V.3 – Images du spray pour une vitesse liquide  $U_L=0,28 \text{ m/s}$  et une vitesse gaz  $U_G=24,4 \text{ m/s}$ . Eau pure (a),  $C_{16}TAB$   $c=2 \text{ cmc}$  (b), SDS  $c=1 \text{ cmc}$  (c),  $C_{12}TAB$   $c=2 \text{ cmc}$  (d). Les positions de mesure  $z=4 \cdot \langle L_I \rangle_{\text{pure}}$  ne sont pas indiquées car en dehors du champ des images. Le cercle en Figure d indique la présence d'une bulle formée à forte concentration de  $C_{12}TAB$ .

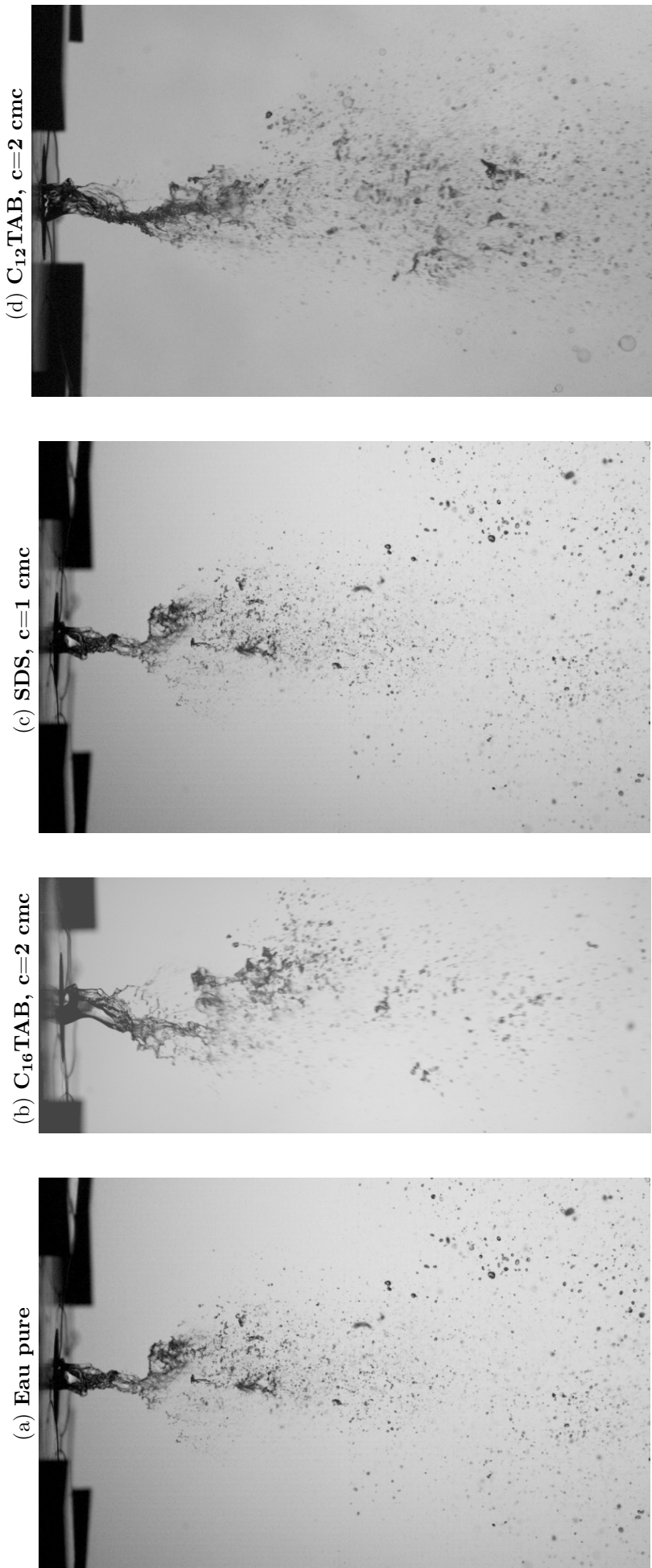


FIGURE V.4 – Images du spray pour une vitesse liquide  $U_L=0,28$  m/s et une vitesse gaz  $U_G=40$  m/s. Eau pure (a),  $C_{16}TAB$   $c=2$  cmc (b), SDS  $c=1$  cmc (c) et  $C_{12}TAB$   $c=2$  cmc (d). Les positions de mesure  $z=4 \cdot \langle L_J \rangle_{pure}$  ne sont pas indiquées car en dehors du champ des images.

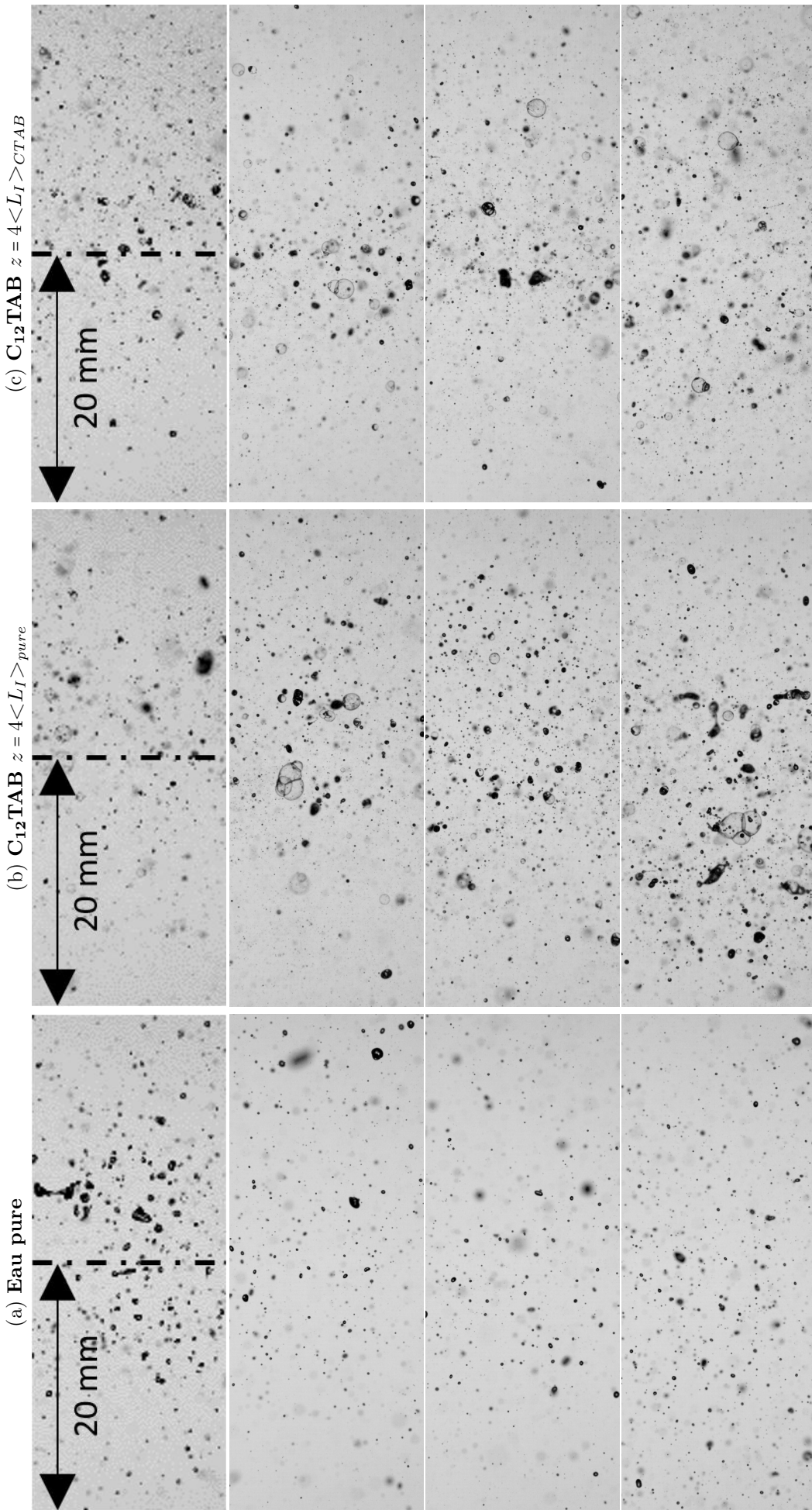


FIGURE V.5 – Images de gouttes obtenues par imagerie, avec un écart temporel de 1 seconde entre chaque colonne. Vitesse liquide  $U_L=0,28$  m/s et vitesse gaz  $U_G=40$  m/s. Eau pure (a) et  $C_{12}TAB$  ( $c=2$  cmc) à distance de mesure proportionnelle à  $\langle L_I \rangle_{pure}$  (b), et proportionnelle à  $\langle L_I \rangle_{C_{12}TAB}$  (c). La ligne pointillée indique l'axe de symétrie de l'injecteur.

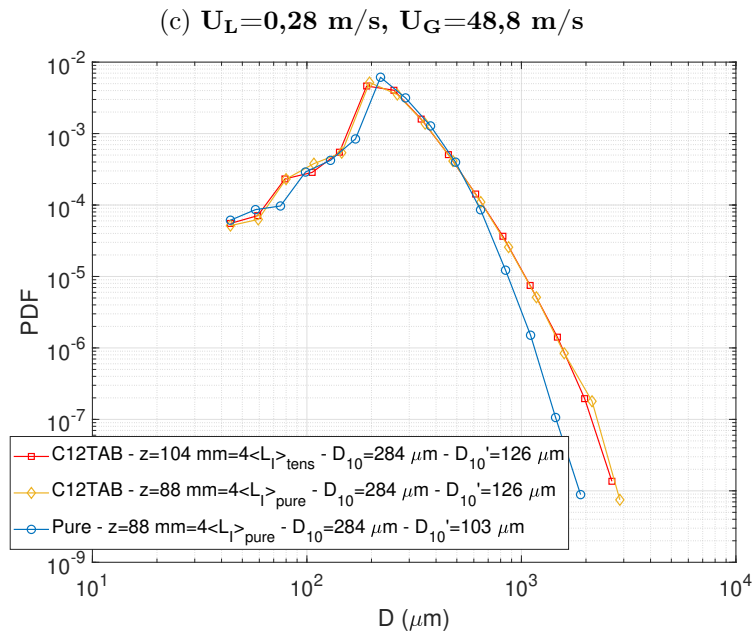
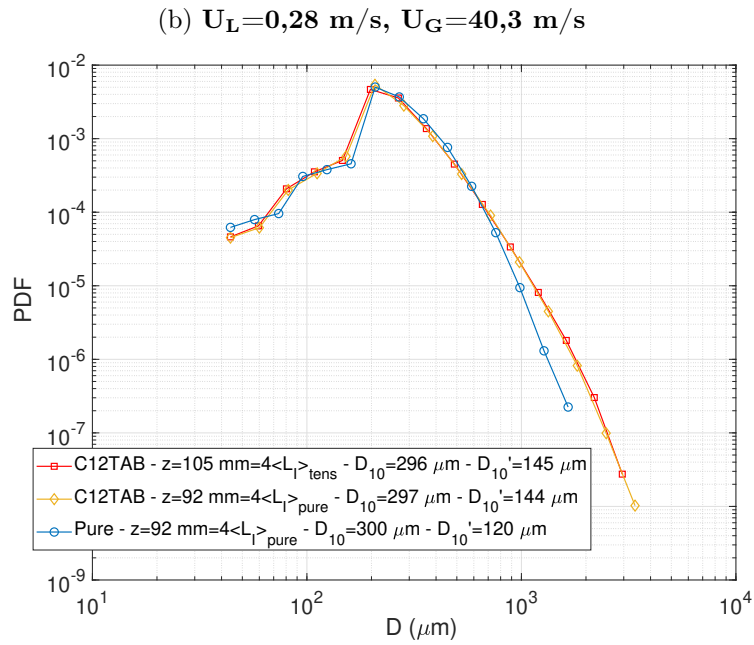
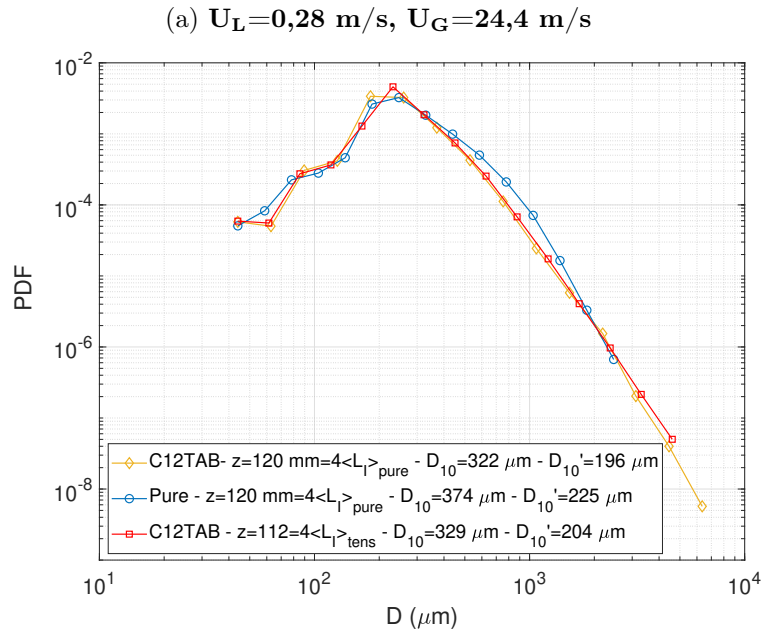


FIGURE V.6 – Distributions de tailles de gouttes obtenues par imagerie rapide

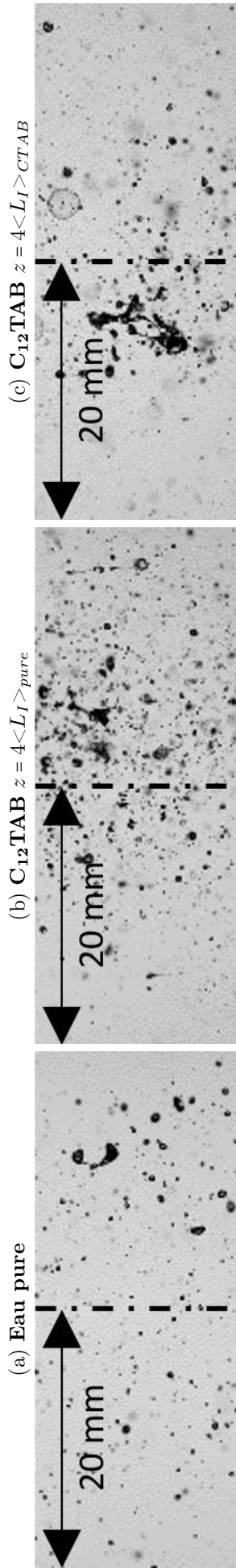


FIGURE V.7 – Exemples d’images de gouttes obtenues par imagerie, présentant des particules de grandes tailles et non sphériques avec ajout de  $C_{12}TAB$ . Vitesse liquide  $U_L = 0,28$  m/s et vitesse gaz  $U_G = 40$  m/s. La ligne pointillée indique l’axe de symétrie de l’injecteur.



## V.4 Résultats obtenus par diffraction laser

Cette section introduit les résultats des mesures de tailles de gouttes par diffraction laser (modèle *Spraytech MAN0368*). Cet instrument peut mesurer des tailles comprises entre 2 et 2500  $\mu\text{m}$ . Comme mentionné dans le chapitre *Méthodes* (section II.4.1), la rapidité des acquisitions et le post-traitement immédiat permettent la réalisation rapide d'un grand nombre de mesures. C'est pourquoi nous avons pu varier la vitesse gaz de 15 à 66 m/s pour une vitesse liquide fixée à 0,28 m/s, réaliser 5 mesures à différentes distances axiales pour chaque vitesse, et ce pour 4 fluides : eau pure ( $\sigma_\infty = 71 \text{ mN/m}$ ), eau pure avec ajout de SDS (1 cmc,  $\sigma_\infty = 32 \text{ mN/m}$ ), C<sub>12</sub>TAB (2 cmc,  $\sigma_\infty = 38 \text{ mN/m}$ ) et C<sub>16</sub>TAB (2 cmc,  $\sigma_\infty = 38 \text{ mN/m}$ ). Les distances axiales de mesure sont choisies proportionnelles à la longueur de jet moyenne observée en eau pure (cf. Figure III.18, chapitre III). Comme nous venons de le voir (cf. section V.1.2), la diffraction laser retourne des mesures de tailles en fraction du volume total des particules, et non en nombre de particules. Les données brutes (tailles en volume) seront systématiquement présentées, mais des transformations des distributions et moyennes en nombre (équation V.9) seront également proposées.

### V.4.1 Reproductibilité des mesures

La Figure V.8 présente des mesures de distributions de tailles en volume (cf. équation V.4) par diffraction répétées deux fois et à six mois d'intervalle, pour quatre vitesses gaz comprises entre 15 et 66 m/s, avec de l'eau pure et aux distances axiales correspondant à  $4\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ .

Les distributions à faible vitesse  $U_G=15 \text{ m/s}$  révèlent un problème de reproductibilité, dont l'origine peut être attribuée à l'absence de transmission lumineuse sur un ou plusieurs récepteurs de l'appareil du fait d'une trop faible densité de particules dans la zone de mesure (Merkus [67]) Par la suite, nous ne considérerons donc pas les résultats obtenus pour cette vitesse gaz.

Pour toutes les vitesses supérieures à 15 m/s (b), la reproductibilité de l'instrument est bonne. Seule la vitesse  $U_G=66 \text{ m/s}$  présente de faibles différences aux grandes tailles (de l'ordre de 0,001% du volume total). De plus, les distributions révèlent bien la présence de gouttes de tailles inférieures à 40  $\mu\text{m}$ , ce qui confirme la limite de la technique d'imagerie utilisée précédemment. La taille maximale est effectivement limitée à 2500  $\mu\text{m}$ , ce qui justifie d'utiliser l'imagerie pour détecter les particules de tailles supérieures.

### V.4.2 Comportement de la taille moyenne avec la distance de mesure pour l'eau pure

Nous observons le comportement de la taille moyenne en volume ( $D_{V10}$ ) avec la distance axiale absolue (Figure V.9a), et relative à la longueur intacte moyenne en eau pure (Figure V.9b) pour différentes vitesses gaz :

- L'on constate tout d'abord les forts diamètres relevés aux distances inférieures à la longueur intacte moyenne. Cela s'explique par une capture du jet liquide lui même, et pas seulement des inclusions liquides.
- Puis la taille moyenne des gouttes ne varie plus au delà de  $2\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$  (cf. Figure V.9b). Ce résultat est identique à ce qu'avait observé Delon [22] dans les mêmes conditions expérimentales (mais avec de l'eau du robinet), où la corde moyenne mesurée par sonde optique était constante à partir de  $z = 2,5\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ .

Les courbes du  $Dv_{32}$  pour ces données sont fournies en Annexe B.1 et révèlent les mêmes tendances.

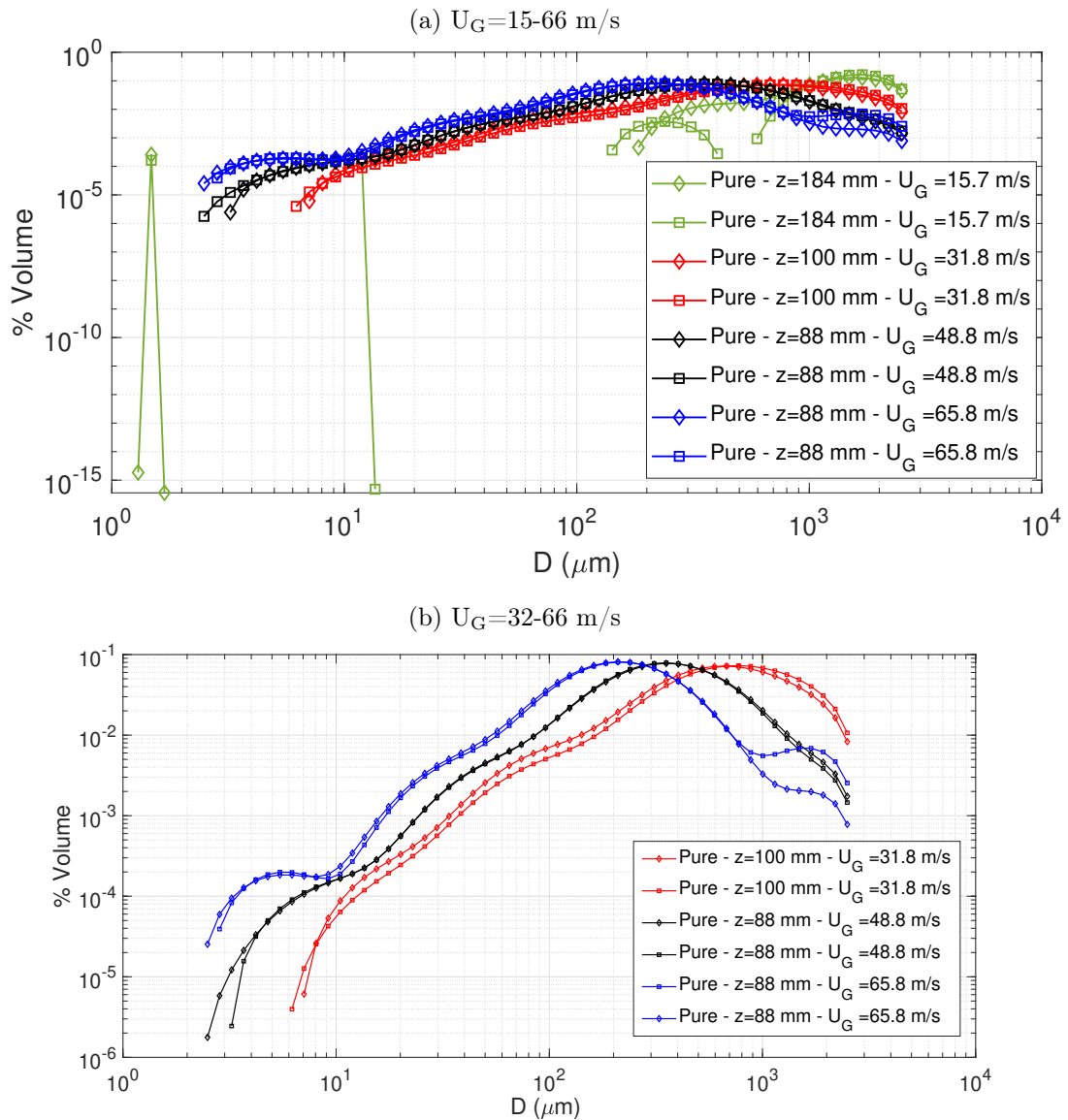


FIGURE V.8 – (a) Reproductibilité de mesures de tailles volumiques obtenues par diffraction laser. Eau pure et  $U_L=0,28$  m/s. (b) Sans les données pour la vitesse gaz  $U_G=15$  m/s.

La Figure V.10 présente ensuite les distributions de tailles de gouttes selon la distance à l'injecteur, pour de l'eau pure et une vitesse gaz de 49 m/s. L'échelle linéaire met en évidence la présence d'une population de gouttes de grands diamètres ( $D > 1000 \mu\text{m}$ ) proche de l'injecteur, dont la probabilité est d'autant plus importante que l'on se situe proche de l'injecteur. Ces grandes tailles correspondent à la détection du jet liquide intact ou à des grandes structures détachées. Puis à  $z=3$  et  $4\langle L_I \rangle$ , la présence de ces grandes tailles devient faible, indiquant l'établissement du processus d'atomisation, et justifie que la distance de mesure  $z=4\langle L_I \rangle$  est suffisante pour caractériser le spray.

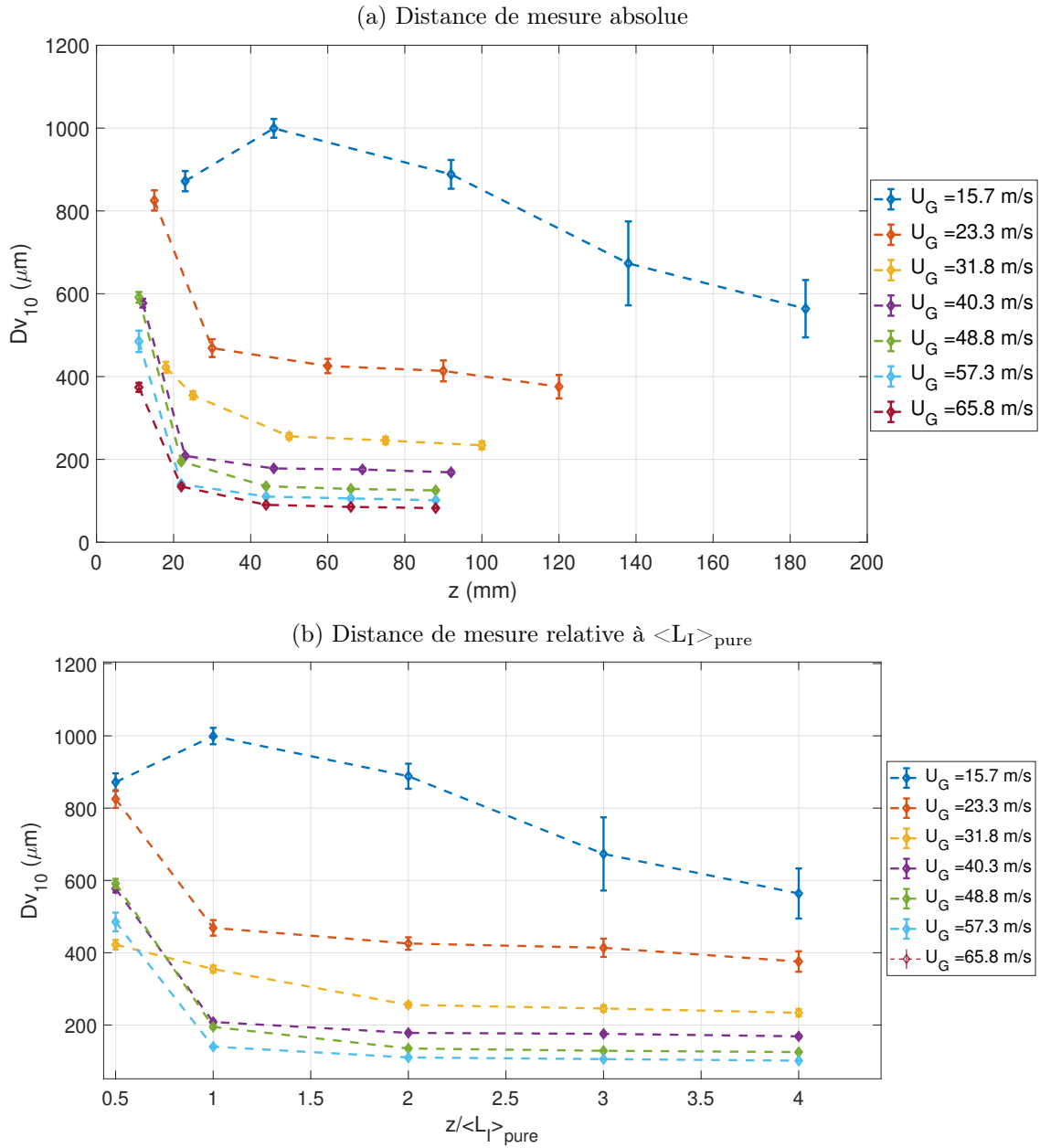


FIGURE V.9 – Diamètre moyen  $Dv_{10}$  en fonction de la vitesse gaz et de la distance axiale absolue (a) et relative à la longueur intacte moyenne (b). Mesures par diffraction laser. Eau pure et  $U_L=0,28$  m/s.

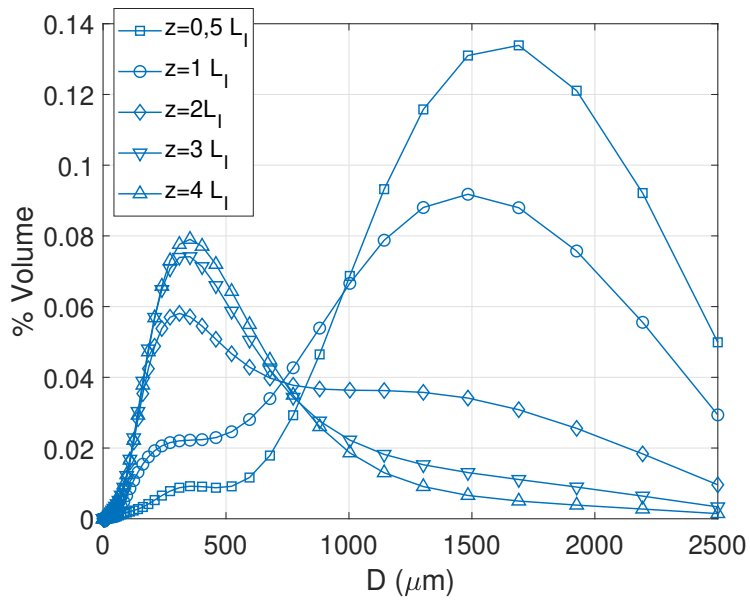


FIGURE V.10 – Distributions de tailles de gouttes pour différentes distances de mesure. Mesures par diffraction laser. Eau pure,  $U_G=49$  m/s et  $U_L=0,28$  m/s.  $L_I=\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ .

### V.4.3 Évolution de la taille avec la distance de mesure : influence des tensioactifs

La Figure V.11 fournit les distributions de tailles de gouttes selon la distance à l'injecteur, cette fois pour le C<sub>12</sub>TAB. Comme pour l'eau pure (Figure V.10), les diamètres de gouttes supérieurs à 1000  $\mu\text{m}$  sont majoritaires proche de l'injecteur ( $z \leq 2 \langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ ), ce n'est plus le cas au delà de  $z = 3 \langle L_I \rangle_{\text{pure}}$  où les distributions sont confondues. Ce qui semble indiquer pour le cas du C<sub>12</sub>TAB également que le processus d'atomisation est complet à partir de cette distance axiale.

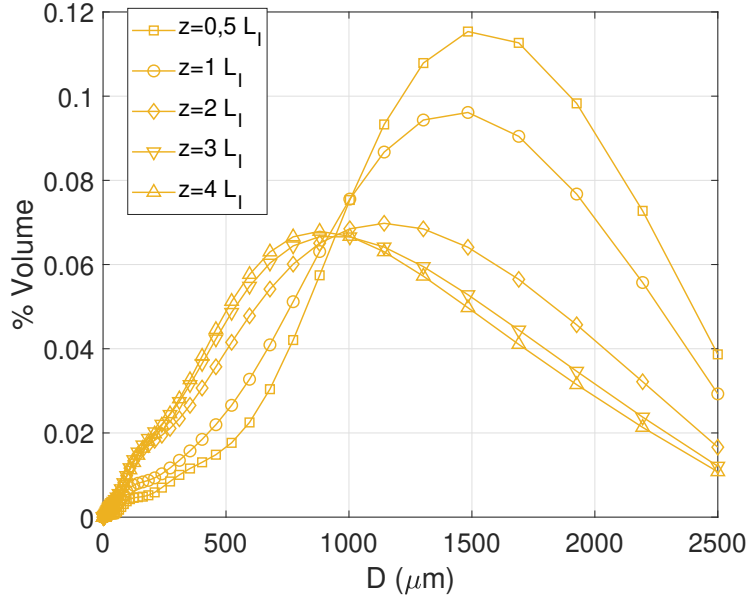


FIGURE V.11 – Distributions de tailles de gouttes pour différentes distances de mesure. Mesures par diffraction laser. C<sub>12</sub>TAB ( $c=2$  cmc),  $U_G=49$  m/s et  $U_L=0,28$  m/s.  $L_I=\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ .

Nous introduisons maintenant en Figure V.12 les résultats du diamètre volumique moyen pour chaque tensioactif, aux mêmes distances de mesure et vitesses gaz qu'en eau pure vues dans la section (Figure V.9). L'on constate que le comportement du  $D_{10}$  pour les trois fluides suit la même évolution avec la distance axiale  $z$  qu'en eau pure, pour l'ensemble des vitesses gaz. La distance de deux fois la longueur de jet moyenne ( $z=2 \langle L_I \rangle_{\text{tens}}$ ) mesurée en présence de chaque tensioactif et pour chaque vitesse gaz, est indiquée par une barre verticale noire. Comme pour l'eau pure, la taille moyenne ne varie plus avec  $z$  au delà de cette distance. Les valeurs du diamètre arithmétique des gouttes (en nombre) correspondant à ces données sont fournies en Annexe B.2, pour de l'eau pure ainsi que pour chaque tensioactif.

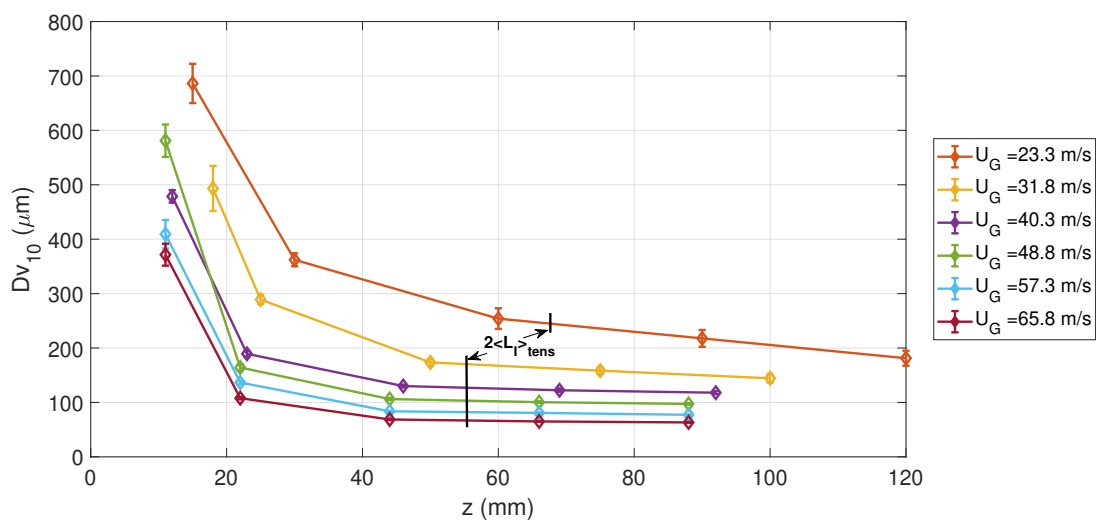
Nous choisissons enfin de montrer en Figure V.13 le rapport des diamètres volumique moyens de chaque tensioactif et de l'eau pure, afin de voir les évolutions relatives de la taille de goutte moyenne avec dopage. La distance axiale est affichée en absolue, correspondant toujours à la plage  $[0,5; 4 \langle L_I \rangle_{\text{pure}}]$ . Nous discutons ci-dessous les résultats par tensioactif, pour les distances supérieures à  $2 \langle L_I \rangle_{\text{pure}}$  (en deçà, les fluctuations importantes du  $Dv_{10}$  correspondent à la présence du jet liquide dans la zone de mesure) :

- La présence de SDS ( $c=1$  cmc, a) réduit la taille volumique moyenne de 20 à 30% comparé à celle de l'eau pure lorsque  $U_G > 30$  m/s, et de 40 à 50% pour  $U_G=24$  m/s.
- Tandis que pour le C<sub>12</sub>TAB ( $c=2$  cmc, b), une diminution de la taille moyenne des gouttes (de 20 à 50%) n'est observée que lorsque  $U_G < 40$  m/s. Elle ne semble pas varier de plus de 5% lorsque  $U_G > 40$  m/s. Cela s'explique par les différences de distributions de tailles entre le C<sub>12</sub>TAB et eau pure (cf. Figure V.15) : le premier induit une plus grande présence de tailles extrêmes par rapport à l'eau pure, qui résulte en un diamètre moyen proche de celui de l'eau pure. Ce tensioactif induit

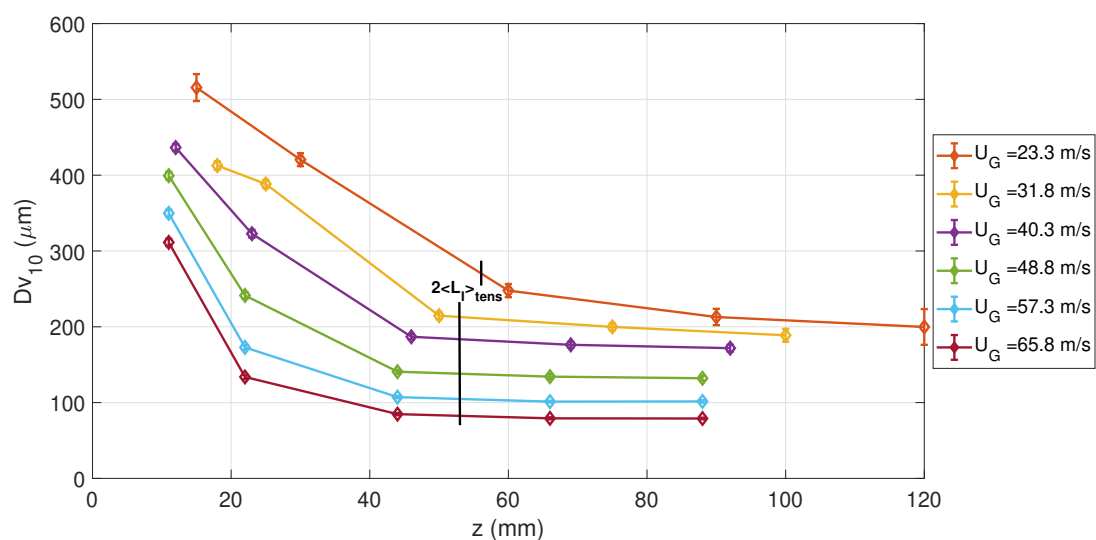
donc bien des augmentations significatives des tailles de gouttes extrêmes dans le spray sur ces plages de vitesses gaz.

- Quant au C<sub>16</sub>TAB ( $c=2$  cmc,  $c$ ), la taille varie peu ( $<10\%$ ) pour l'ensemble des vitesses.

(a) SDS 1 cmc



(b) C<sub>12</sub>TAB 2 cmc



(c) C<sub>16</sub>TAB 2 cmc

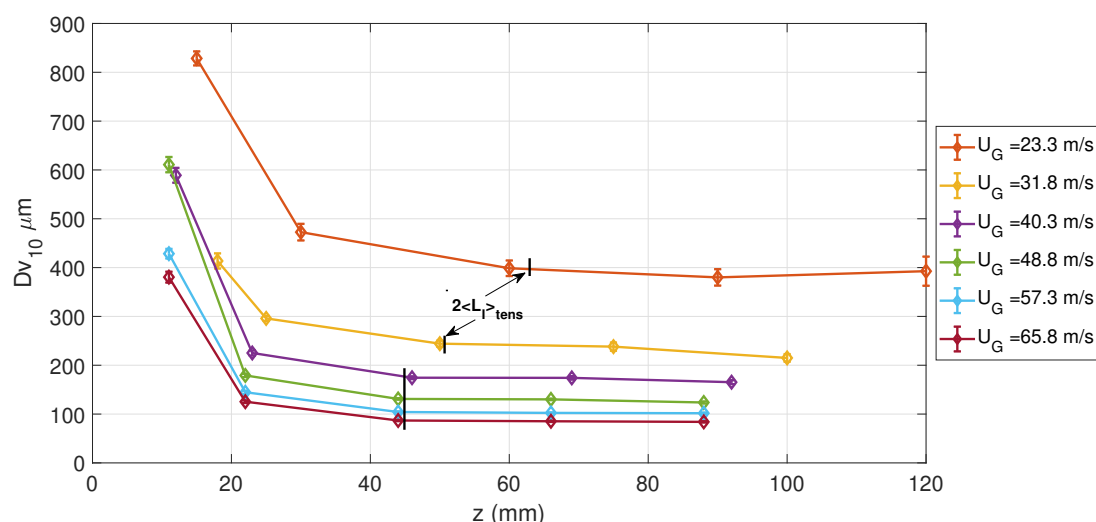


FIGURE V.12 – Évolution du diamètre volumique moyen pour chaque tensioactif, en fonction de la distance axiale de mesure et de la vitesse gaz. Mesures par diffraction laser. (a) SDS  $c=1$  cmc, (b) C<sub>12</sub>TAB 2 cmc, (c) C<sub>16</sub>TAB 2 cmc. Vitesse liquide fixée à  $U_L=0,28$  m/s. La valeur de deux longueur de jet moyenne avec tensioactif est indiquée par une barre verticale pour chaque condition.

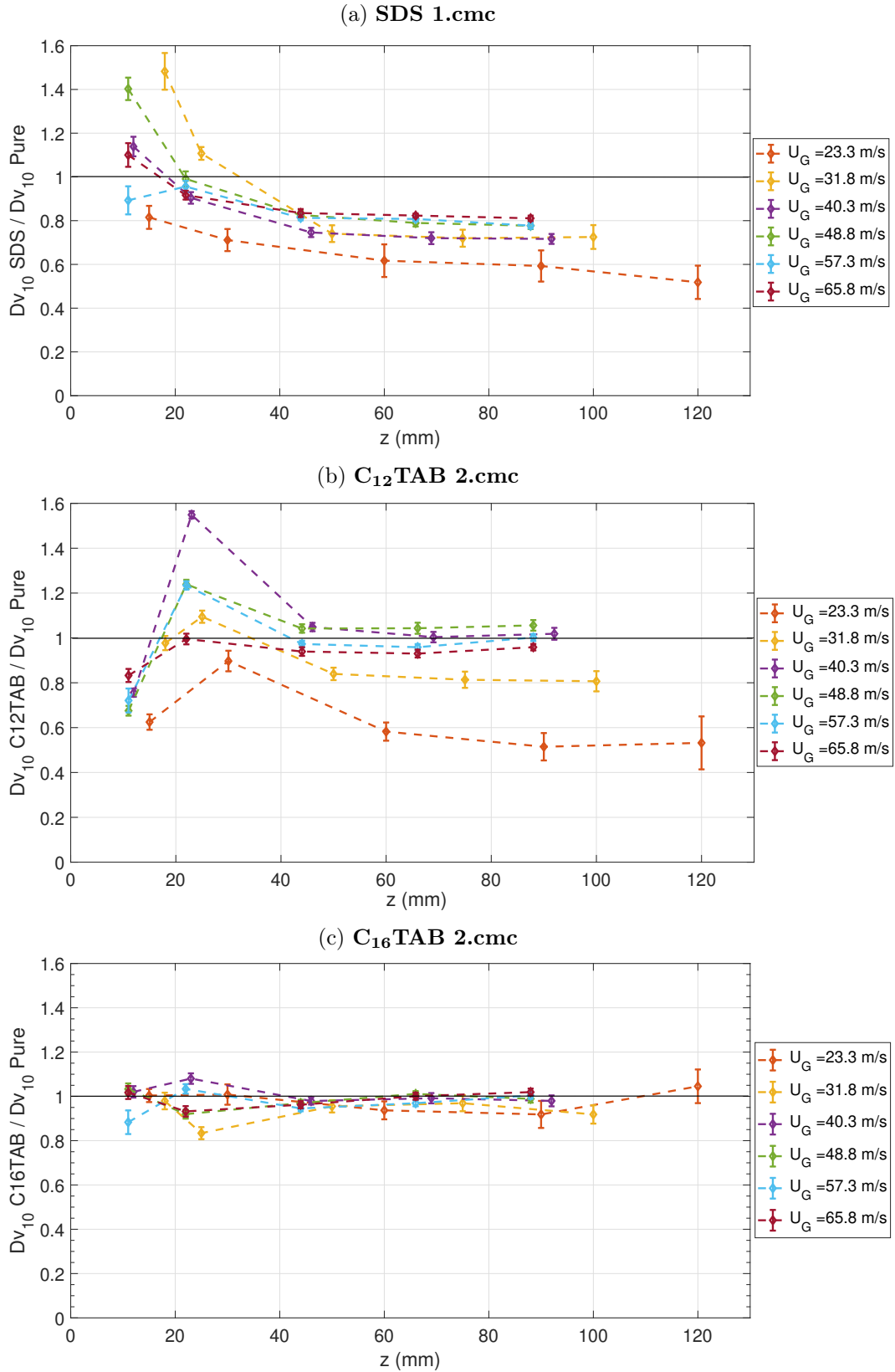


FIGURE V.13 – Rapport du diamètre volumique moyen avec tensioactif et en eau pure, en fonction de la distance axiale absolue et pour différentes vitesses gaz. Mesures par diffraction laser. (a) SDS  $c=1.cmc$ , (b) C<sub>12</sub>TAB 2.cmc, (c) C<sub>16</sub>TAB 2.cmc. Vitesse liquide fixée à  $U_L=0,28$  m/s.



## V.4.4 Distributions de tailles de gouttes

### V.4.4.1 En eau pure

Nous procédons à une transformation des distributions de tailles de volume à nombre (équation V.9). Les tailles en nombre résultantes de cette transformation sont présentées en Figure V.14, dans un premier temps pour de l'eau pure et différentes vitesses gaz. Les distributions de tailles (Figure V.14) présentent une plus faible occurrence des grandes tailles de gouttes ( $>200 \mu m$ ) à mesure que la vitesse gaz augmente, et à l'inverse une plus forte occurrence des faibles tailles à vitesse gaz élevée. La diminution des gouttes de grandes tailles lorsque la vitesse gaz augmente peut s'expliquer par une augmentation de la fréquence de brisure du jet liquide (cf. Figure III.26), et le plus grand nombre de gouttes de faibles tailles par un plus fort épluchage de l'interface à fort  $U_G$ . Nous verrons ultérieurement que la taille moyenne diminue avec  $U_G$ , comme pour la taille en volume (en Figure V.18).

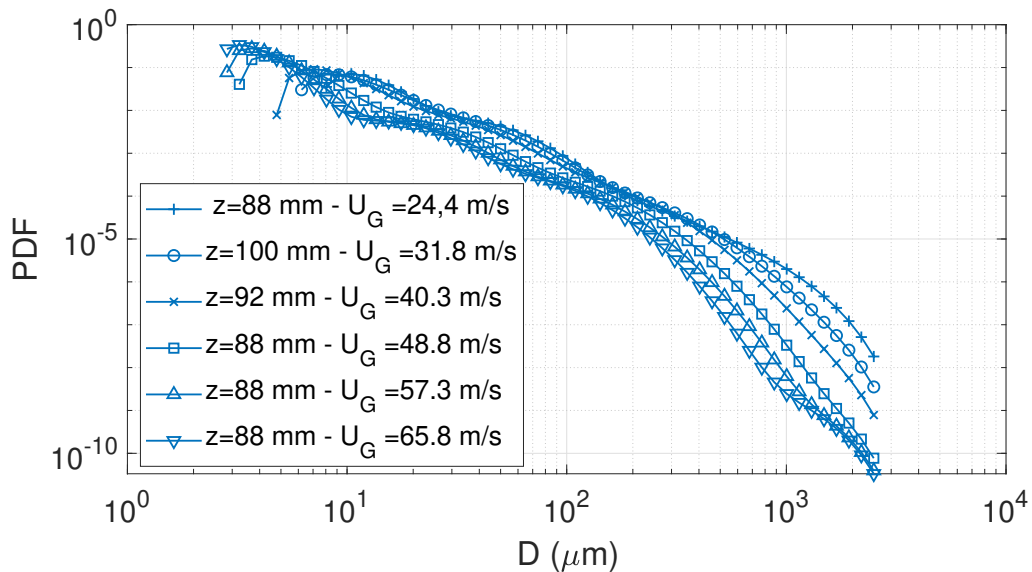


FIGURE V.14 – Distributions de taille de gouttes en nombre, en fonction de la vitesse gaz et pour de l'eau pure, pour la plus grande distance de mesure  $z=4\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ . Mesures par diffraction laser. Vitesse liquide  $U_L=0,28 \text{ m/s}$ .

### V.4.4.2 Avec tensioactifs

Nous nous intéressons ensuite aux distributions de tailles dans les mêmes conditions que celles obtenues par imagerie (cf. Figure V.6). La Figure V.15 introduit les distributions de tailles en volume (cf. équation V.4), avec et sans tensioactifs et toujours à une distance de mesure  $z=4\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ . Les distributions en nombre sont données en Figure V.16. Notons que les écarts relatifs entre les distributions de différents fluides sont différents en volume et en nombre, car pour le calcul de tailles en volume, le poids des grands diamètres est plus important que pour un calcul en nombre (cf. relation d'une distribution de volume à nombre, équation V.9). L'on observe que :

- les distributions avec  $C_{16}TAB$  (2 cmc) sont identiques à celles de l'eau pure. Excepté pour les distributions en nombre à faible vitesse gaz (Figure V.16a) où le  $C_{16}TAB$  présente une densité de probabilité supérieure à celle de l'eau pure pour  $D < 10 \mu m$ , et qui ne contient pas d'évènement détecté sur la plage de diamètres  $20-30 \mu m$ . Comme pour les mesures en eau pure à  $U_G=15 \text{ m/s}$  (cf. Figure V.8a), l'origine de cette discontinuité est probablement due à un manque de transmission lumineuse sur un ou plusieurs capteurs de l'instrument de mesure (Merkus [67]).

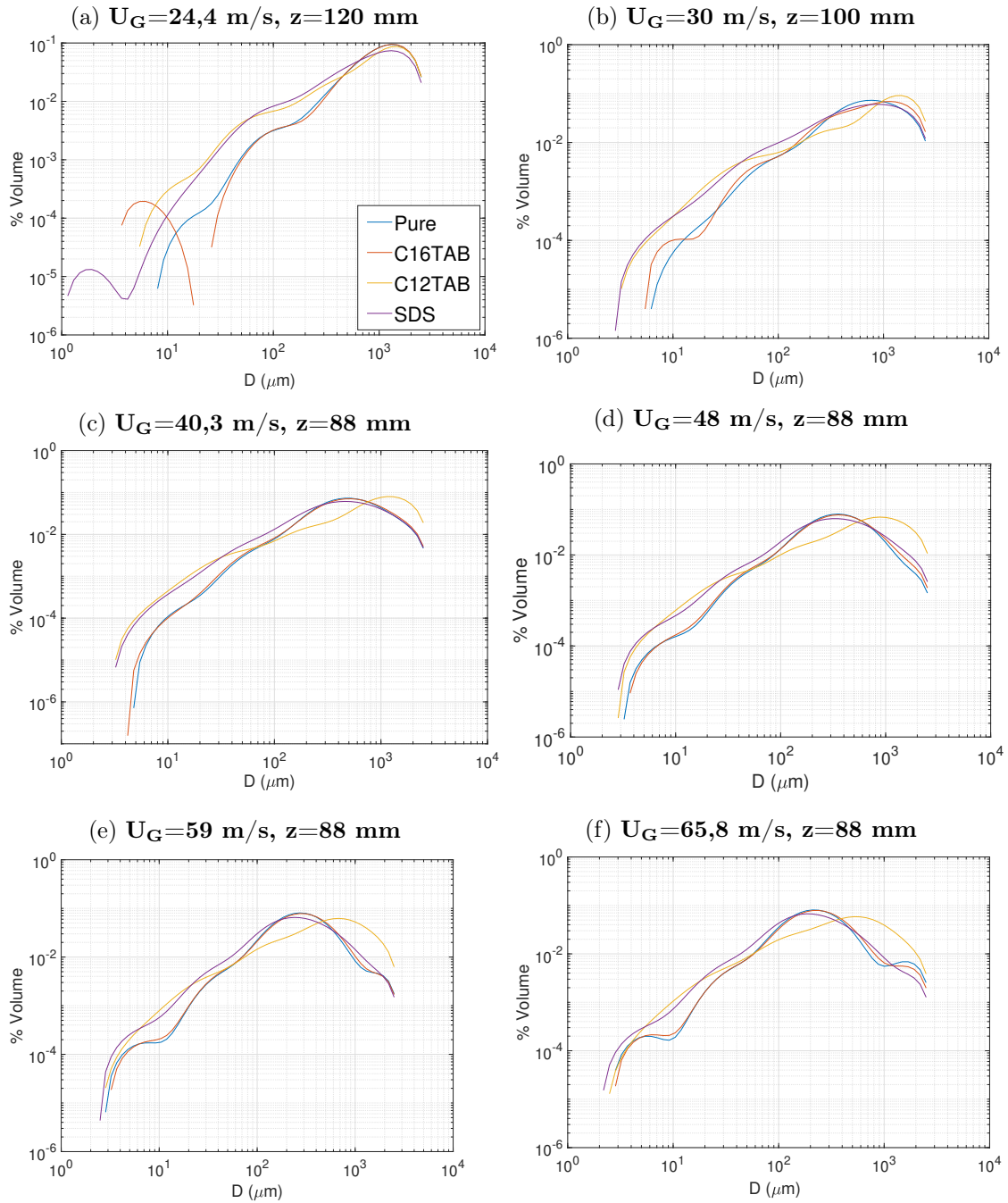


FIGURE V.15 – Distributions de tailles en volume, mesurées par diffraction laser. Vitesse liquide :  $U_L=0,28$  m/s.

- SDS (1 cmc) et  $C_{12}$ TAB (2 cmc) présentent, par rapport à l'eau pure, une plus grande fraction volumique de tailles inférieures à  $\approx 100 \mu\text{m}$ ...
- ... le  $C_{12}$ TAB présente également plus de grandes tailles ( $> 1000 \mu\text{m}$ ) pour les vitesses supérieures à 50 m/s, et moins aux vitesses inférieures. Le SDS présente quant à lui moins de tailles supérieures à  $1000 \mu\text{m}$  pour toutes les vitesses gaz. SDS et  $C_{12}$ TAB modifient donc largement les distributions de tailles comparé au cas de l'eau pure.

Ces différentes distributions de tailles volumiques de gouttes obtenues avec les trois tensioactifs peuvent s'expliquer par les effets respectifs de ces derniers sur la structure du jet, dont l'atomisation conduit à la formation du spray.

Concernant les distributions à plus faible vitesse gaz  $U_G=24$  m/s (Figure V.15a), les gouttes de tailles inférieures à  $500 \mu\text{m}$  avec SDS et  $C_{12}$ TAB représentent une plus grande

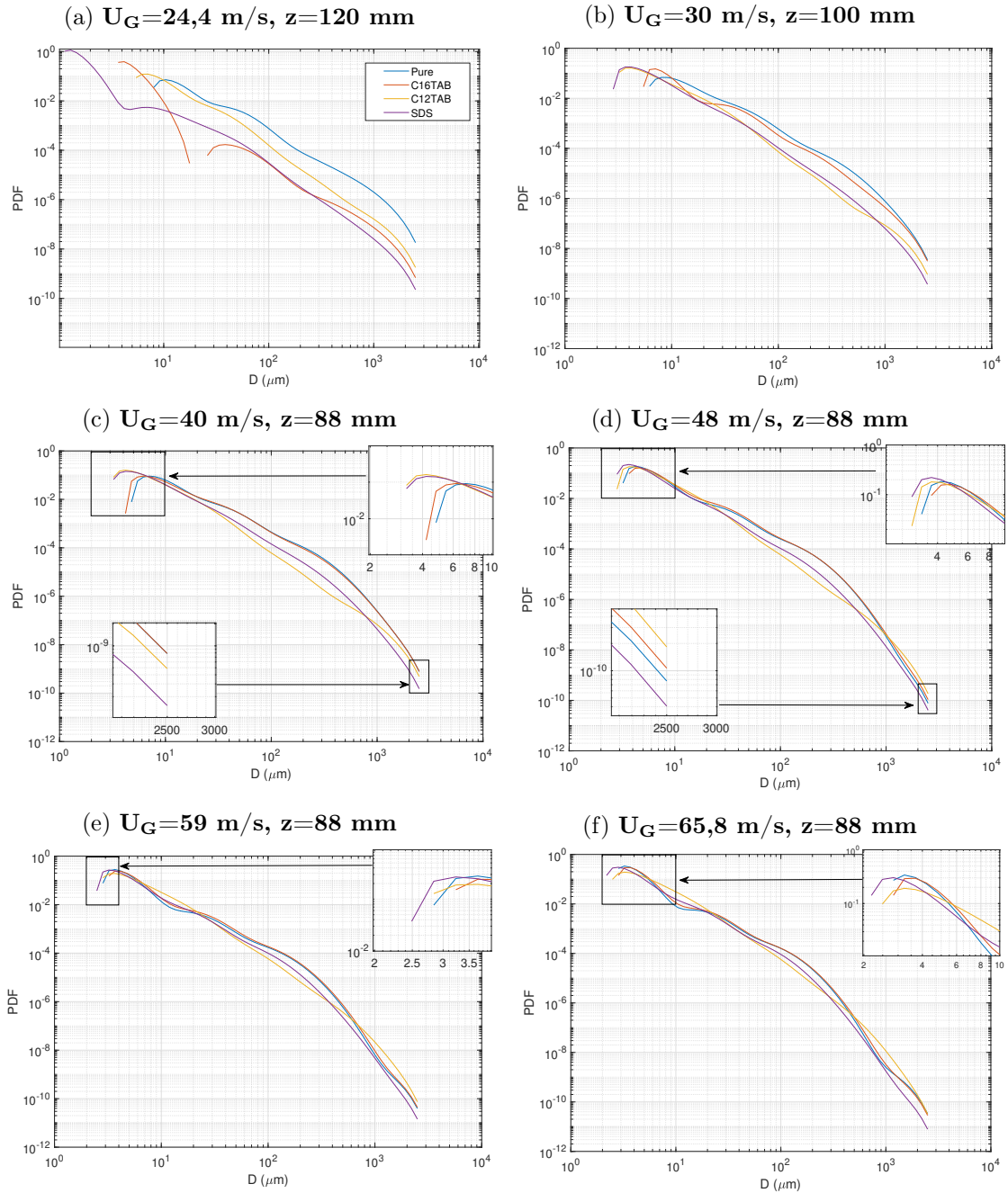


FIGURE V.16 – Distributions de tailles en nombre, mesurées par diffraction laser. Vitesse liquide :  $U_L=0,28$  m/s.

fraction du volume de gouttes total qu'en eau pure, et aussi un plus grand nombre (Figure V.16a). L'on voit également apparaître une deuxième population de gouttes de très faibles diamètres ( $<10-20 \mu m$ ) avec ces tensioactifs. Nous avons vu que le régime de brisure du jet est de type membrane dans ces conditions, avec et sans dopage (cf. cartographie en Figure III.11h du chapitre III). Cependant, les membranes formées avec SDS et  $C_{12}TAB$  à ces concentrations présentaient des surfaces maximales juste avant leur rupture presque deux fois supérieures à celles formées avec de l'eau pure ou avec  $C_{16}TAB$  (cf. Table III.4). Les gouttes issues de la rupture d'une membrane sont alors de plus faible diamètre et en plus grand nombre, ce qui peut expliquer les différences de distributions de tailles que nous obtenons en Figure V.15a pour le SDS et le  $C_{12}TAB$ .

Nous tentons ensuite d'apporter des explications aux effets observés aux vitesses gaz

supérieures ( $U_G > 30$  m/s, Figures V.15c-f et V.16a-f). Nous rappelons que pour ces vitesses gaz, le mode de brisure du jet est de type fibre avec et sans dopage (cf. Figure III.11h) :

- l'absence d'effet du C<sub>16</sub>TAB sur les tailles de gouttes est cohérente avec l'absence d'effet sur la structure du jet liquide intact (cf. chapitre III), causée en premier lieu par une dynamique d'adsorption trop lente pour réduire significativement la tension de surface.
- l'ajout de SDS montre des distributions avec un plus grand volume de gouttes de faibles tailles. Ce qui peut être attribué à la diminution de la tension de surface à l'interface du jet liquide. Nous discuterons à la fin de ce chapitre si ces gouttes de plus faibles diamètres proviennent de la brisure du jet liquide ou de l'épluchage. Un plus faible nombre de grandes tailles est également constaté pour l'ensemble des vitesses gaz.
- le C<sub>12</sub>TAB présente, comme le SDS, un plus grand volume et nombre de diamètres inférieurs à 100  $\mu m$  qu'en eau pure. Ce qui signifie que les deux molécules agissent de façon identique sur les mécanismes menant à la formation de ces gouttes de faibles tailles.

L'apparition d'un plus grand nombre de grandes tailles uniquement avec le C<sub>12</sub>TAB est consistante avec les résultats d'imagerie, bien qu'ici la taille maximale détectée est limitée à 2500  $\mu m$ , ce qui confirme la nécessité d'utiliser les résultats de l'imagerie pour commenter les effets du C<sub>12</sub>TAB sur les grandes tailles de gouttes. Notons aussi que les distributions en nombre pour les vitesses  $U_G = 30$  et 40 m/s (b-c) ne montrent pas une augmentation du nombre de grandes tailles avec C<sub>12</sub>TAB, mais une diminution. Nous avons vu que c'est également le cas du SDS pour toutes les vitesses gaz.

Les effets du SDS et du C<sub>12</sub>TAB constatés sur les plus grandes tailles de particules ( $1000 < D < 2500 \mu m$ ) peut s'expliquer par plusieurs hypothèses :

1. le C<sub>12</sub>TAB diminue la fréquence de brisure du jet liquide (cf. section III.3.1.6, Figure III.27). Comme discuté dans la section V.3 dédiée à la granulométrie par imagerie, une fréquence de brisure du jet plus faible implique un lâcher de particules liquides de plus grands volumes, et peut expliquer l'accroissement des grands diamètres observé. Mais nous ne connaissons pas les valeurs de la fréquence de brisure avec SDS.
2. un effet de rhéologie d'interface. Mais l'absence d'information pour les tensioactifs étudiés ne permet pas d'étudier cette hypothèse.

Une recherche des causes à ces changements induits par le SDS et le C<sub>12</sub>TAB sera approfondie en fin de chapitre.

La Figure V.17 propose maintenant l'évolution avec la vitesse gaz des distributions de tailles (en nombre) avec C<sub>12</sub>TAB. L'on constate que les tendances des PDF selon la vitesse gaz sont semblables à celles de l'eau pure (cf. Figure V.14) : le nombre de grandes tailles de gouttes diminue avec la vitesse gaz ( $D > 1000 \mu m$ ), et le nombre de faibles diamètres ( $D < 10 \mu m$ ) augmente globalement avec la vitesse gaz.

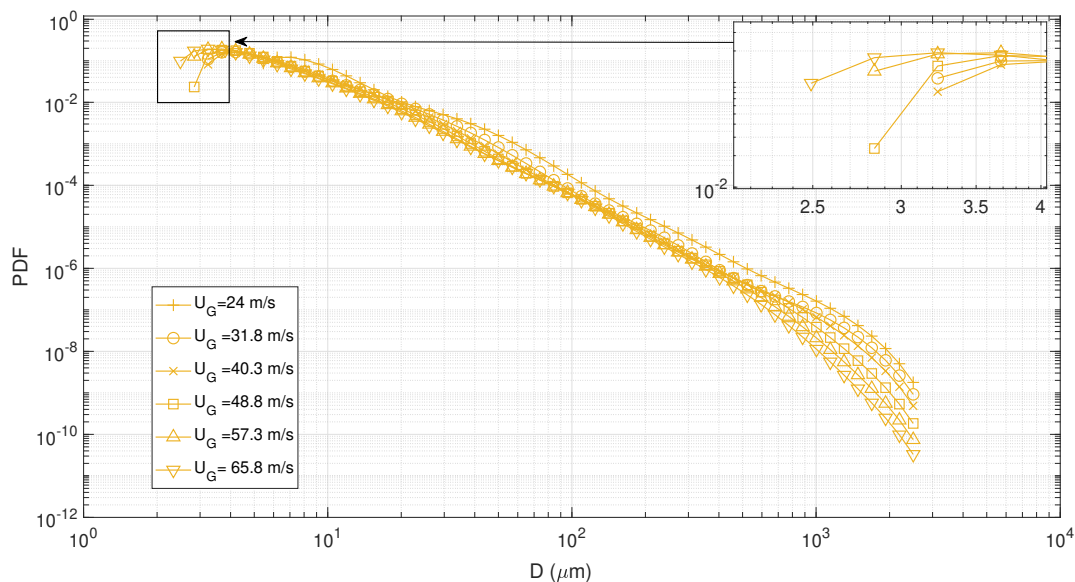


FIGURE V.17 – Distributions de taille de gouttes en nombre, en fonction de la vitesse gaz et avec  $C_{12}TAB$  ( $c=2$  cmc), pour la plus grande distance de mesure  $z=4 \cdot \langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ . Mesures par diffraction laser. Vitesse liquide  $U_L=0,28$  m/s.

## V.4.5 Évolution de la taille de gouttes moyenne avec la vitesse gaz

### V.4.5.1 En eau pure

Les évolutions du  $D_{V10}$  et du  $D_{V32}$  avec la vitesse gaz et pour de l'eau pure sont tracées en Figure V.18, pour les plus grandes distances de mesures, i.e.  $z=4 \cdot \langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ . Un ajustement des données est réalisé suivant la loi puissance suivante (cf. chapitre *État de l'art*, section I.1.2) :

$$D = a \cdot U_G^{-n} \quad (\text{V.10})$$

Nous obtenons un exposant  $n = 1,4$  pour le  $D_{V32}$ , et  $n = 1,5$  pour le  $D_{V10}$ , ce qui est proche de ce qu'a obtenu Delon [22] en configuration co-axiale ( $n \approx 2$ ).

Puis la taille moyenne calculée en nombre, en fonction de la vitesse gaz, est donnée en Figure V.19 (toujours pour la plus grande distance de mesure). Une interpolation selon l'équation V.10 donne un coefficient  $n = -1,4$  pour l'évolution du  $D_{10}$  et du  $D_{32}$  avec la vitesse gaz.

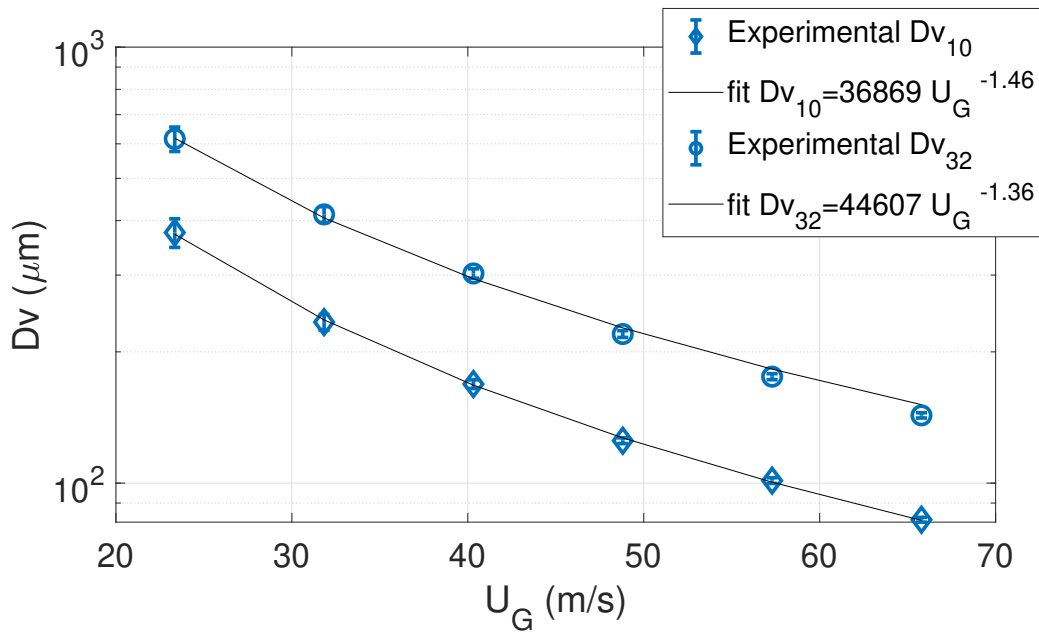


FIGURE V.18 –  $Dv_{10}$  et  $Dv_{32}$  fonctions de la vitesse gaz, aux plus grandes distances  $z=4\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$  tracées en Figure V.9b. Mesures par diffraction laser. Eau pure et  $U_L=0,28$  m/s.

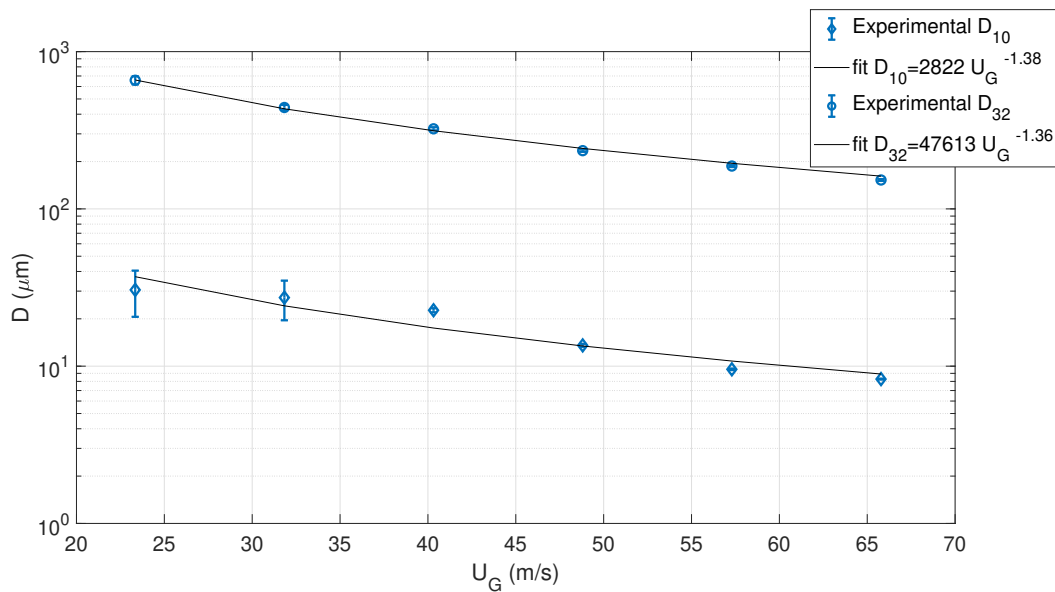


FIGURE V.19 –  $D_{10}$  et  $D_{32}$  en fonction de la vitesse gaz, aux plus grandes distances  $z=4\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ . Mesures par diffraction laser. Eau pure et  $U_L=0,28$  m/s.

#### V.4.5.2 Évolution de la taille de gouttes moyenne avec la vitesse gaz : ajout de tensioactifs

La Figure V.20 permet d'apprécier l'évolution du diamètre moyen en volume avec la vitesse gaz. Les courbes en traits pleins sont les ajustements des données par l'équation V.10. L'exposant  $n$  est réduit avec ajout de SDS et  $C_{12}$ TAB (de  $n = 1,5$  pour l'eau pure et le  $C_{16}$ TAB, à  $n = 0,8$  et  $1$  pour le SDS et le  $C_{12}$ TAB respectivement). Autrement dit, la décroissance de la taille avec la vitesse gaz est moins forte avec SDS et  $C_{12}$ TAB. Le plus fort écart avec la valeur en eau pure est observé lorsque  $U_G=24$  m/s pour ces deux tensioactifs. C'est cette valeur du  $Dv_{10}$  qui est responsable d'une valeur du coefficient  $n$  plus faible. Si l'on réalise l'ajustement uniquement pour les vitesses gaz  $U_G > 30$  m/s, l'on

obtient  $n = 1, 2$ .

Par ailleurs, les distributions de tailles en volume pour les vitesses gaz supérieures à 30 m/s (Figures V.15b-f) révélait que le C<sub>12</sub>TAB génère un plus grand volume de faibles et de grandes tailles comparé à l'eau pure, qui se compensent donc en une taille moyenne équivalente à celle de l'eau pure pour ces conditions d'injection.

La Figure V.21 donne ensuite l'évolution du diamètre arithmétique moyen avec la vitesse gaz pour les mêmes données. Nous rappelons que la mesure à  $U_G=24$  m/s pour le C<sub>16</sub>TAB n'est pas considérée comme valide du fait de la discontinuité de la distribution (cf. Figure V.15a). Pour les mélanges eau-C<sub>16</sub>TAB (rouge) et eau-SDS (violet), le  $D_{10}$  ne présente plus une dépendance à la vitesse gaz de la forme  $U_G^{-n}$ , mais croît jusqu'à 40 m/s puis décroît. D'où le mauvais ajustement selon cette forme (courbes en traits continus). En comparaison à l'eau pure, le  $D_{10}$  est fortement réduit avec les tensioactifs SDS et C<sub>12</sub>TAB pour les vitesses gaz inférieures à 50 m/s (deux à trois fois plus faible pour  $30 < U_G < 50$  m/s, jusqu'à dix fois plus faible pour  $U_G = 24$  m/s). Puis l'écart entre eau pure et tensioactifs est réduit pour les vitesses gaz supérieures à 50 m/s.

Si la vitesse gaz devient très grande, l'on peut s'attendre à un effet du tensioactif de plus en plus faible car les temps de rupture dans le processus d'atomisation sont de plus en plus courts, réduisant par là même le temps laissé au tensioactif pour être transféré à l'interface et agir sur la tension de surface. C'est un comportement visible sur la Figure V.21 : l'écart entre le diamètre moyen des gouttes avec et sans dopage devient de plus en plus faible lorsque  $U_G$  augmente.

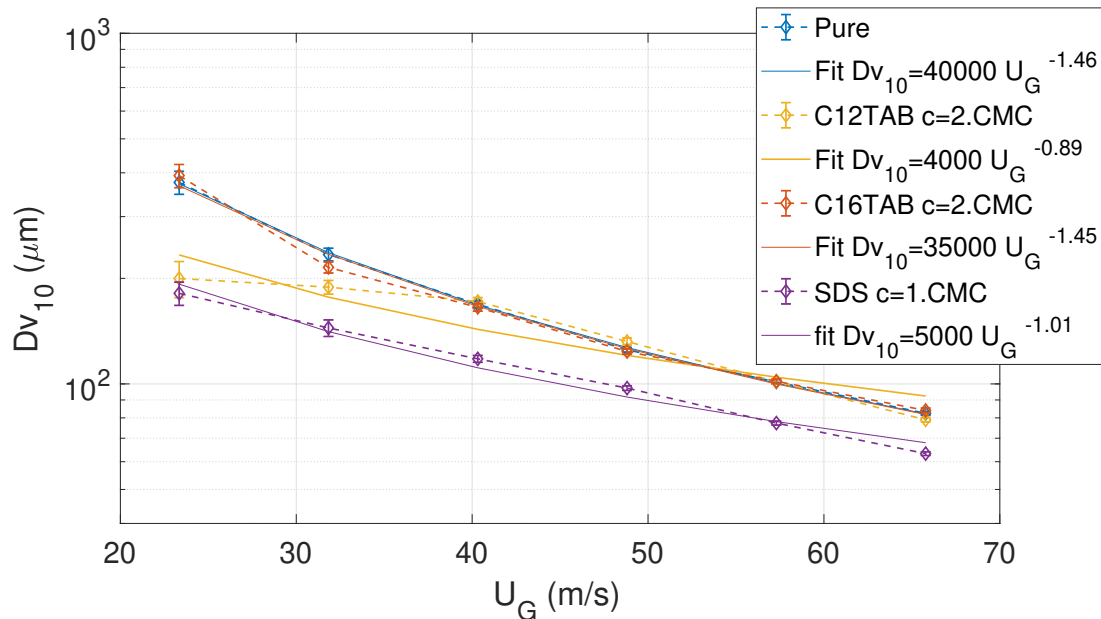


FIGURE V.20 –  $D_{v10}$  en fonction de la vitesse gaz, pour l'eau pure et les trois tensioactifs, mesuré par diffraction laser.  $z=4\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ ,  $U_L=0,28$  m/s. Traits pleins : ajustements de la forme  $D_{v10}=a.U_G^n$ .

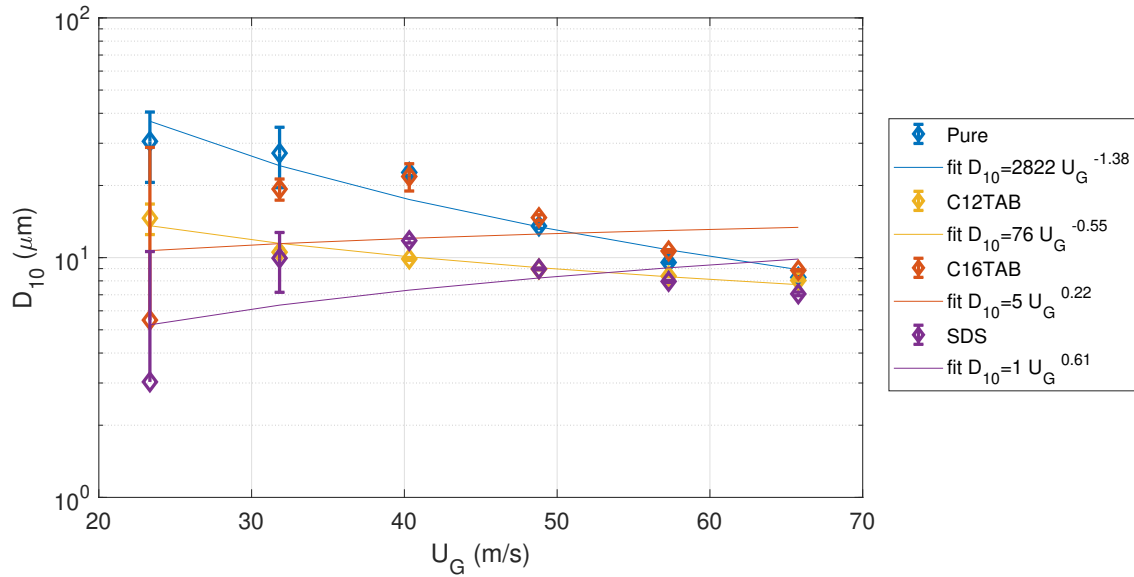


FIGURE V.21 –  $D_{10}$  en fonction de la vitesse gaz, pour l'eau pure et les trois tensioactifs, mesuré par diffraction laser.  $z=4\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ ,  $U_L=0,28$  m/s. Traits pleins : ajustements de la forme  $D_{10}=a.U_G^n$ .

#### V.4.6 Mesures de tailles par diffraction laser, conclusion

Cette section visait à analyser l'influence des tensioactifs sur les tailles de gouttes dans le spray. Nous avons utilisé la diffraction laser notamment pour caractériser l'évolution axiale du spray, pour des distances allant jusqu'à quatre fois la longueur de jet moyenne observée en eau pure. Les distributions de tailles (en volume et en nombre) montrent que le SDS et le C<sub>12</sub>TAB génèrent plus de fines gouttes ( $d < 100 \mu\text{m}$ ) que l'eau pure. Mais ils changent également les distributions des diamètres supérieurs à  $1000 \mu\text{m}$ . A faible vitesse gaz  $U_G=24$  m/s, les trois tensioactifs montrent un plus grand nombre de tailles inférieures à  $10 \mu\text{m}$  probablement dû au phénomène de rupture du jet liquide en membranes pour ces conditions d'injection (cf. section III.2.0.1).

Les résultats du diamètre de goutte moyen en volume pour différentes distances axiales de mesure montrent que sans tensioactif, la taille moyenne reste constante au delà de  $2\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$  et pour les vitesses gaz supérieures à 30 m/s. Par ailleurs, les mesures proche injecteur à des distances inférieures à la longueur intacte moyenne mesurée par analyse d'image (cf. section III.3.1), ont confirmé la présence du jet liquide intact. Ce qui est consistant avec les mesures de la longueur intacte obtenues dans le chapitre III. Ce comportement est inchangé avec ajout de tensioactifs.

Il a été montré également que la taille moyenne en volume décroît avec la vitesse gaz en eau pure. Elle est significativement réduite avec les tensioactifs SDS et C<sub>12</sub>TAB comparé à l'eau pure (de 2 à 10 fois plus faible), et le  $D_{V10}$  évolue avec la vitesse gaz suivant une loi puissance dont la valeur de l'exposant est inférieure à celle de l'eau pure avec les tensioactifs SDS et C<sub>12</sub>TAB ( $n = -1,5$  en eau pure, contre  $\approx -1$  avec SDS et C<sub>12</sub>TAB). Le C<sub>16</sub>TAB n'a pas d'impact sur les tailles de gouttes, excepté aux faibles vitesses gaz inférieures à 30 m/s. Contrairement au diamètre moyen en volume, le diamètre arithmétique en nombre ne présente pas une décroissance avec la vitesse gaz avec dopage, mais une croissance jusqu'à  $U_G=40$  m/s puis une décroissance au delà. Ces résultats sont rappelés en Figure V.22. Les courbes du diamètre de Sauter en nombre, pour de l'eau pure et les trois tensioactifs en fonction de la vitesse gaz, sont données en Figure V.24. Ici, les comportements avec la vitesses gaz sont très similaires à ceux du  $D_{V10}$  (Figure V.20), avec des valeurs de l'exposant  $n$  (équation V.10) réduites avec SDS et C<sub>12</sub>TAB comparé à l'eau pure.



Un moyen de comprendre les différents comportements des tailles moyennes avec la vitesse gaz peut être de revenir aux distributions de tailles et de comparer les rapports des probabilités d’obtenir de grandes tailles (1000-2500  $\mu m$ ) avec et sans dopage, et d’obtenir de faibles tailles (2-10  $\mu m$ ). Ces comparaisons sont proposées en Figure V.23 :

- Concernant le C<sub>12</sub>TAB (a), les probabilités d’obtenir des tailles inférieures à 10  $\mu m$  et supérieures à 1000  $\mu m$  sont respectivement 2 à 3 fois plus élevées et 6 à 10 fois plus faibles qu’en eau pure jusqu’à 40 m/s. Ce qui explique que le  $D_{10}$  et le  $D_{32}$  soient plus faibles qu’en eau pure pour les vitesses gaz inférieures à 40 m/s (Figures V.22 et V.24). Au delà de 40 m/s, la probabilité d’obtenir un nombre de gouttes de tailles supérieures à 1000  $\mu m$  reste supérieur à l’eau pure avec C<sub>12</sub>TAB, tandis que le nombre de gouttes de tailles inférieures à 10  $\mu m$  est identique. Ce qui explique que l’écart entre le  $D_{10}$  du C<sub>12</sub>TAB et celui de l’eau pure soit réduit lorsque  $U_G$  augmente (le SMD du C<sub>12</sub>TAB surpasse même légèrement celui de l’eau pure<sup>1</sup>).
- Le SDS (b) présente comme le C<sub>12</sub>TAB un plus fort nombre de tailles inférieures à 10  $\mu m$  en dessous de  $U_G=40$  m/s qu’en eau pure, et un plus faible nombre de grands diamètres (>1000  $\mu m$ ) jusqu’à  $U_G=59$  m/s. C’est pourquoi le  $D_{10}$  du SDS, et à fortiori le  $D_{32}$ , sont toujours plus faibles que ceux de l’eau pure.
- Le C<sub>16</sub>TAB (c) présente significativement plus de tailles inférieures à 10  $\mu m$  et moins de tailles supérieures à 1000  $\mu m$  uniquement pour  $U_G=32$  m/s. C’est seulement pour cette vitesse gaz que le  $D_{10}$  est plus faible que celui de l’eau pure (ce n’est pas le cas du  $D_{32}$ <sup>1</sup>). Les écarts de probabilité à l’eau pure restent faibles comparés à ceux constatés avec les deux autres tensioactifs, et donc les diamètres moyens résultants sont proches de ceux de l’eau pure.

Nous avons ainsi expliqué l’origine statistique des différences d’évolutions de tailles de gouttes entre les tensioactifs. Nous proposons dans la dernière section de ce chapitre d’en discuter les origines physiques.

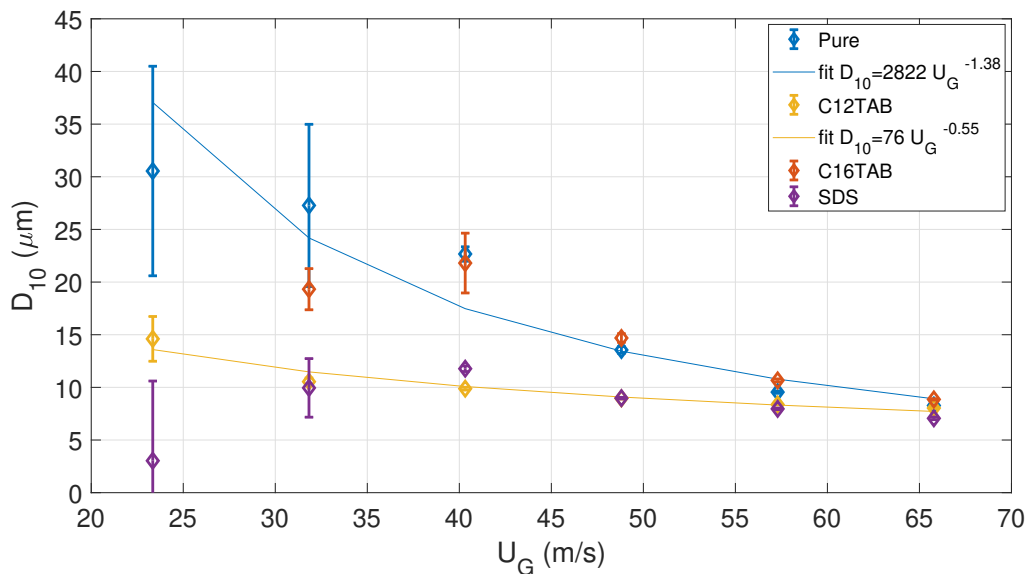


FIGURE V.22 –  $D_{10}$  en fonction de la vitesse gaz mesuré par diffraction laser, en eau pure et avec tensioactifs. L’échelle des ordonnées est ici linéaire.  $z=4\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ ,  $U_L=0,28$  m/s.

1. Le poids des grandes tailles est plus important dans le calcul du  $D_{32}$  que dans celui du  $D_{10}$

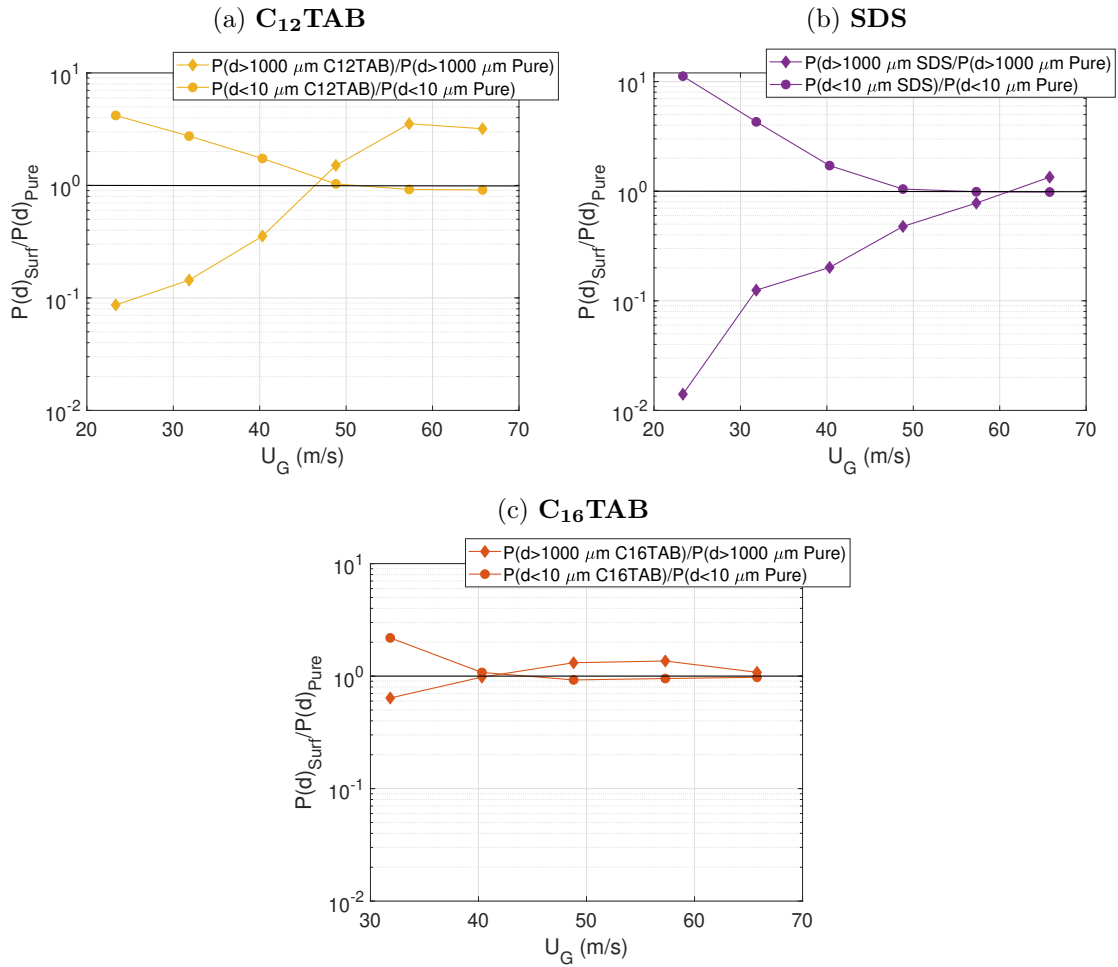


FIGURE V.23 – Rapports avec et sans tensioactif des probabilités d’obtenir un nombre de tailles de gouttes supérieur à  $1000 \mu\text{m}$  ( $\blacklozenge$ ), et d’obtenir un nombre de tailles de gouttes inférieur à  $10 \mu\text{m}$  ( $\bullet$ ). Calculs à partir des distributions de tailles en nombre (Figure V.16).

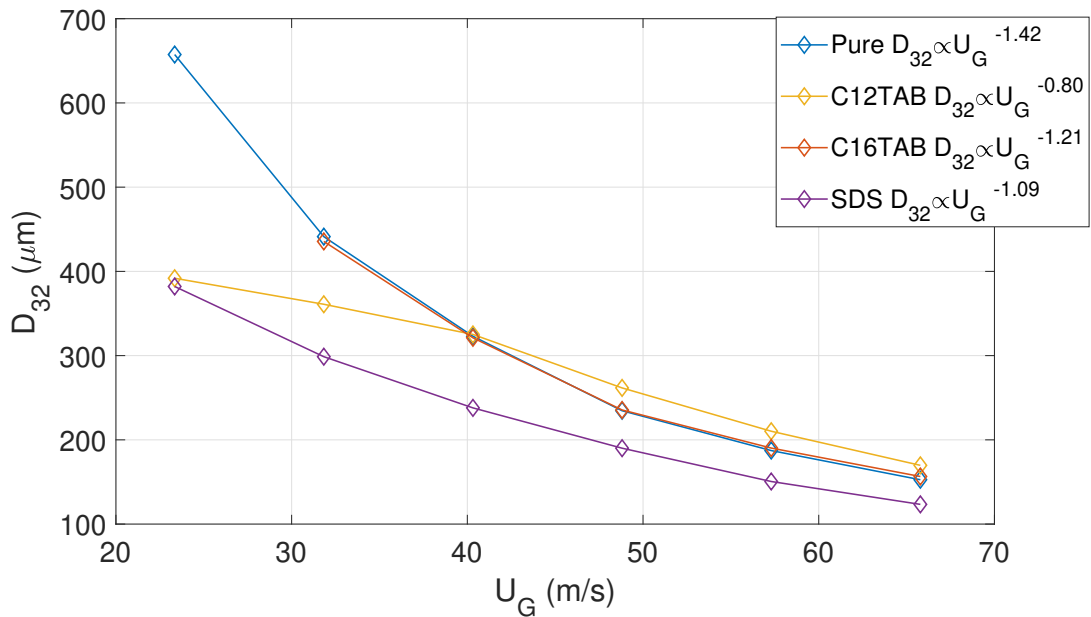


FIGURE V.24 –  $D_{32}$  mesuré par diffraction laser en fonction de la vitesse gaz, en eau pure et avec tensioactifs.  $z=4 < L_I >_{\text{pure}}$ ,  $U_L=0,28$  m/s. Les exposants  $n$  obtenus par ajustement des données selon l’équation V.10 sont donnés dans la légende.

## V.5 Sonde optique Doppler

Cette partie introduit les résultats de la campagne de mesures par sonde optique Doppler, visant à caractériser l'effet du  $C_{12}TAB$  sur le spray. L'apport principal de cet instrument de mesure dans l'étude du spray est la possibilité de caractériser les vitesses de gouttes, en plus des tailles. Seul ce tensioactif a été utilisé à une concentration de 2 cmc, car il présentait des effets maximaux sur la structure du jet ainsi que des effets singuliers sur les distributions de tailles mesurées par imagerie et diffraction laser. Les mesures ont été réalisées sur l'axe de l'injecteur liquide et à une distance  $z=4\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ , en eau pure comme avec tensioactif (cf. Figure V.2). La durée des acquisitions a été variée de 10 à 30 minutes à une fréquence de 250 MHz, et permet de détecter de 3000 à 25000 gouttes selon les régimes d'injection.

### V.5.1 Évolution du spray avec les paramètres d'injection sans tensioactif

Nous nous intéressons dans un premier temps à l'évolution des caractéristiques du spray avec les vitesses d'injection, sans ajout de tensioactif.

#### V.5.1.1 Vitesses de gouttes

La Figure V.25 introduit la moyenne arithmétique et les distributions de vitesses en fonction de la vitesse gaz. Seules les vitesses avec un signal Doppler valide sont prises en compte. Pour l'ensemble des acquisitions, le taux de validation des signaux Doppler est de l'ordre de 70%. La vitesse moyenne croît linéairement avec la vitesse gaz. Les distributions présentent des allures similaires.

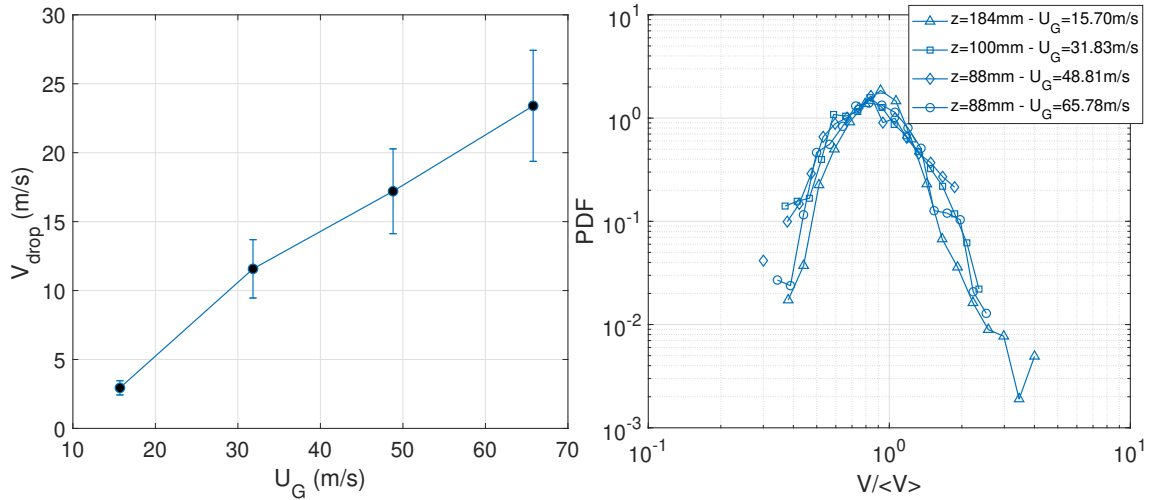


FIGURE V.25 – Vitesse moyenne arithmétique sans interpolation mesurée par sonde optique Doppler en fonction de la vitesse gaz (gauche), et distributions rapportées à la valeur moyenne (droite). Distances de mesures variées avec la vitesse gaz :  $z=4\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ . Eau pure et vitesse liquide fixée à  $U_L=0,28$  m/s. Les barres d'erreur sur les vitesses moyennes représentent l'écart-type.

Concernant le comportement de la vitesse des gouttes en fonction de la vitesse liquide (Figure V.26), la moyenne diminue faiblement avec  $U_L$  et l'écart-type est constant. Ce qui se traduit sur les distributions, qui sont similaires pour les différentes vitesses liquides.

#### V.5.1.2 Tailles de gouttes

Le calcul de distributions de diamètres de gouttes à partir de l'inversion de distributions de cordes a été initialement réalisé pour l'ensemble des données présentées dans cette partie, en utilisant la méthode décrite en Annexe B.3. Pour que l'inversion d'une PDF de

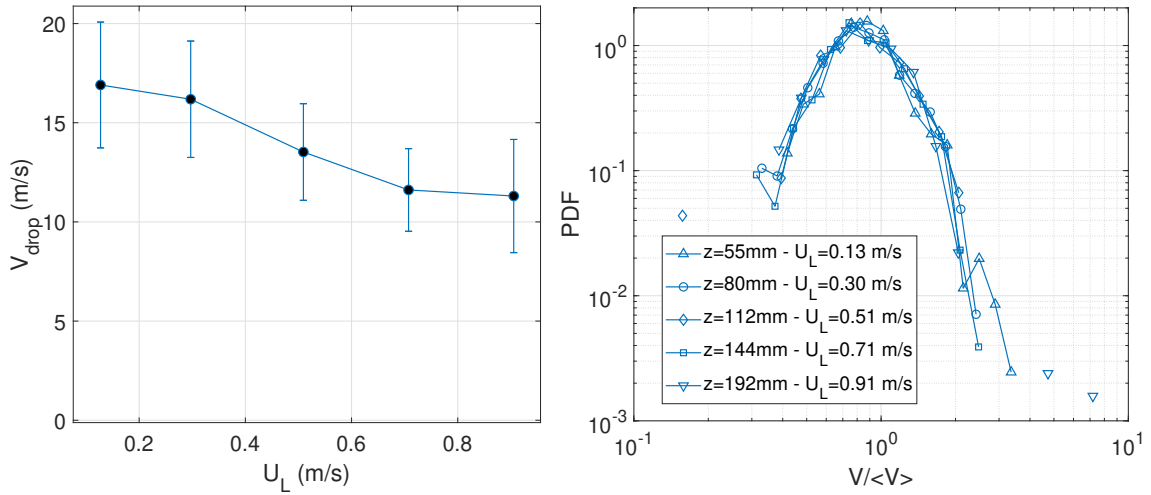


FIGURE V.26 – Mesures par sonde optique de la vitesse moyenne arithmétique en fonction de la vitesse liquide (gauche), et distributions (droite). Distances de mesures variées avec la vitesse liquide :  $z=4\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ . Eau pure, vitesse gaz fixée à  $U_G=49$  m/s. Les barres d'erreur sur les vitesses moyennes représentent l'écart-type.

cordes à diamètres soit valide, aucune probabilité  $P(R_i)$  de la distribution  $P(R)$  ne doit être nulle. Chaque classe de corde  $C_i$  doit donc présenter un grand nombre d'évènements. Malgré un nombre important de réalisations pour chaque acquisition, cela n'a pas suffi à obtenir des distributions de tailles sans valeurs nulles ou avec un nombre de classes suffisant. Nous ne sommes donc pas en mesure de fournir ces résultats. C'est pourquoi les distributions de cordes seront montrées dans ce qui suit, ainsi que l'évolution de la taille de goutte moyenne en utilisant le diamètre de Sauter évalué à partir de la corde moyenne.

Avant de présenter les résultats de cordes et tailles de gouttes, nous rappelons que des évènements sans signal Doppler valide peuvent être corrélés à une certaine population de temps liquides (généralement les plus faibles). Nous souhaitons connaître les éventuelles différences de cordes et de vitesses entre les données avant et après interpolation, pour les acquisitions de ce chapitre. Les Figures V.27 et V.28 présentent respectivement les distributions de cordes et de vitesses de gouttes mesurées en eau pure et pour les différentes vitesses gaz testées, avec et sans interpolation. Les distributions pour les données des autres fluides sont fournies en Annexe B.4 (Figures B.6-B.7). Avec interpolation, les distributions de cordes sont légèrement inférieures pour  $U_G=49$  et  $66$  m/s, de l'ordre de 10%. Notons des différences de valeurs extrêmes pour les vitesses gaz  $U_G=32$  et  $49$  m/s, qui sont dues à un choix différent de classes de cordes. Les distributions de vitesses qui correspondent à ces données (en Figure V.28), montrent de faibles différences dans les distributions, similaires à celles des cordes. Les écarts pour les données traitées ici restent donc faibles, ce qui peut s'expliquer par un taux de signaux Doppler valides très satisfaisant (d'environ 70%).

La Figure V.29 introduit maintenant la moyenne et les distributions de cordes en fonction de la vitesse gaz, avec interpolation, ainsi que le diamètre de Sauter évalué à partir de la corde moyenne (pour une distribution de tailles polydisperse, Clark & Turton [17]) :

$$D_{32} = \frac{3}{2} C_{10} \quad (\text{V.11})$$

En raison de la forte différence de corde moyenne entre la vitesse gaz  $U_G=15$  m/s et les autres, les ordonnées sont affichées en échelle logarithmique. L'on retrouve une décroissance de la corde moyenne et du  $D_{32}$  avec la vitesse gaz de la forme  $D_{32} \propto U_G^n$ . Une valeur d'exposant  $n=-1,8$  est obtenue en utilisant la méthode des moindres carrés. Un exposant  $n=-1,4$  avait été obtenu à partir des mesures par diffraction laser. Les valeurs de cordes sont proches de celles obtenues dans le chapitre précédent pour des conditions d'injection

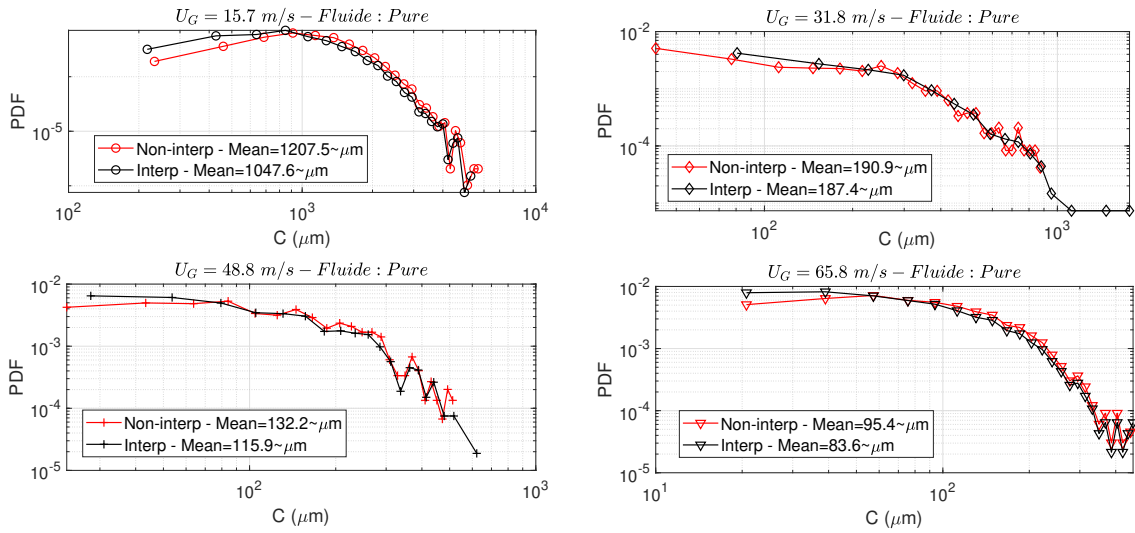


FIGURE V.27 – Distributions de cordes de gouttes pour différentes vitesses gaz. Distances de mesures :  $z=4\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ . Eau pure,  $U_L=0,28$  m/s. Mesures par sonde optique.

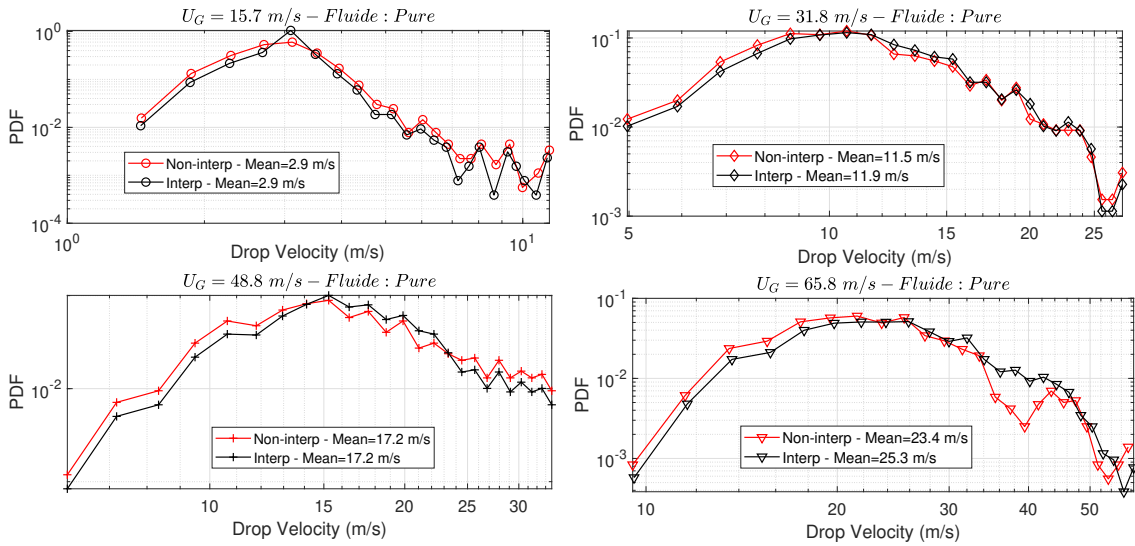


FIGURE V.28 – Distributions de vitesses de gouttes pour différentes vitesses gaz. Distances de mesures :  $z=4\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ . Eau pure,  $U_L=0,28$  m/s.

similaires (cf. Figure IV.17), bien que les distances axiales de mesure étaient plus faibles ( $1,5$  à  $3\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ , contre  $4\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$  ici). Ce qui est cohérent avec les mesures de tailles par diffraction laser, qui ont montré que le diamètre de goutte moyen est constant au delà de  $z=2\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$  pour les vitesses gaz supérieures à  $20$  m/s. La corde moyenne mesurée par Delon [22] par sonde optique (technique "pop") au centre du spray est également donnée (en vert), et est inférieure à nos mesures d'un facteur deux pour les vitesses gaz supérieures à  $30$  m/s. La vitesse liquide fixée par Delon [22] était également de  $0,28$  m/s, la distance de mesure de  $100$  mm et constante pour toutes les vitesses gaz, ce qui est proche des distances utilisées ici ( $z=100$  mm pour  $U_G=30$  m/s,  $z=88$  mm pour les vitesses gaz supérieures). Le diamètre de Sauter obtenu par diffraction laser est quant à lui plus proche des valeurs de sonde optique Doppler pour les vitesses gaz supérieures à  $40$  m/s. La Figure V.29 (droite) révèle des distributions de cordes très proches entre elles pour les vitesses gaz supérieures à  $30$  m/s.

L'évolution des tailles avec la vitesse liquide (Figure V.30) montre une croissance linéaire de la corde moyenne et du SMD. Les distributions de cordes recentrées par la moyenne sont globalement confondues, seules les extrémités gauches des PDF diffèrent.

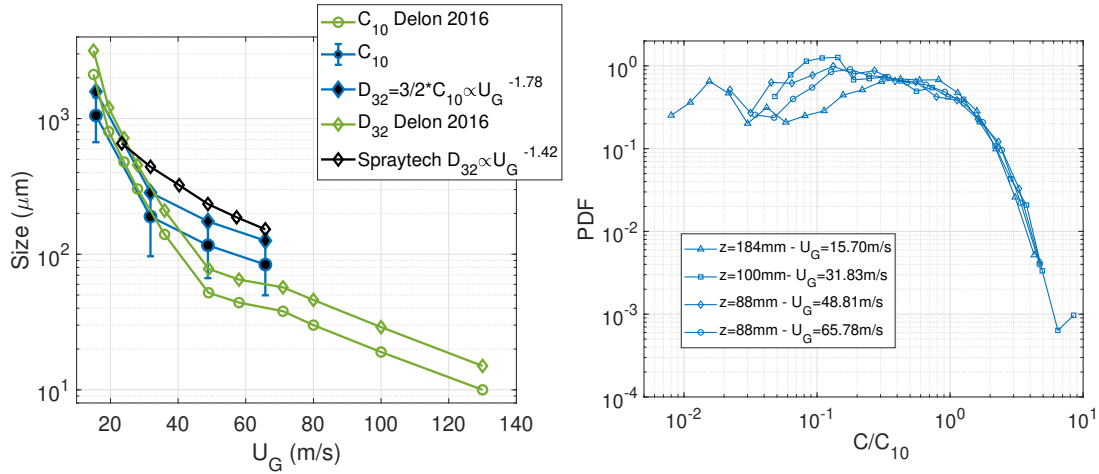


FIGURE V.29 – Mesures par sonde optique de la corde et du diamètre de Sauter moyen des gouttes en fonction de la vitesse gaz (gauche), et distributions rapportées à la valeur moyenne (droite). Sont également données à titre indicatif le  $D_{32}$  mesuré par diffraction laser (bien que la quantité mesurée par cette technique soit différente de celle mesurée par la sonde), ainsi que les valeurs de corde moyenne mesurées par Delon [22] au centre du spray, à une distance fixe  $z=100$  mm, pour une vitesse liquide  $U_L=0,28$  m/s et avec de l'eau du robinet (en vert). Le  $D_{32}$  est évalué à partir de la corde moyenne (équation V.11). Distances de mesures variées avec la vitesse gaz :  $z=4\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ . Eau pure et vitesse liquide fixée à  $U_L=0,28$  m/s. Les barres d'erreur sur les cordes moyennes représentent l'écart-type.

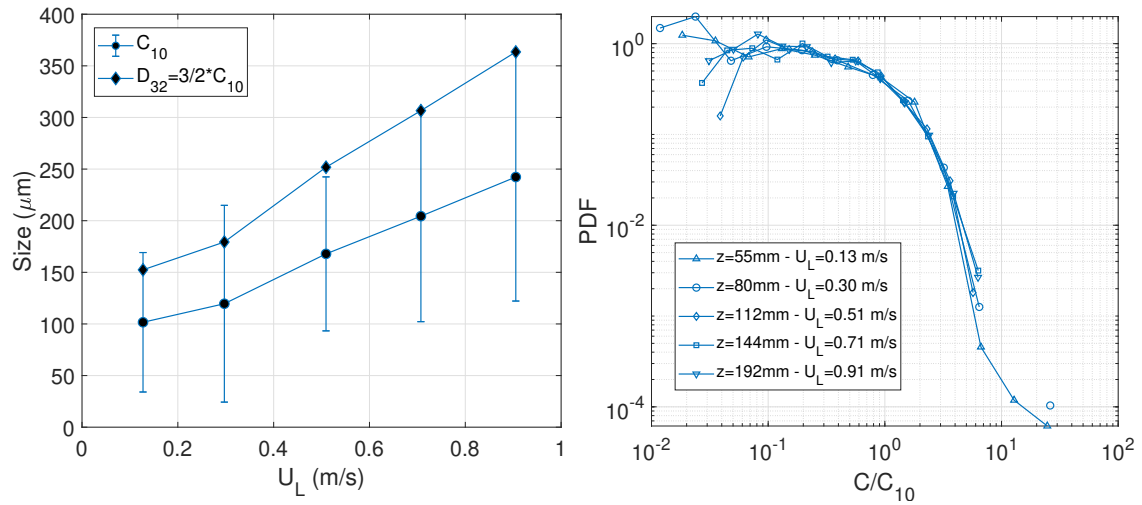


FIGURE V.30 – Mesures par sonde optique de la corde moyenne et du diamètre de Sauter en fonction de la vitesse liquide (gauche), et distributions (droite). Le  $D_{32}$  est évalué à partir de la corde moyenne (équation V.11). Distances de mesures variées avec la vitesse liquide :  $z=4\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ . Eau pure, vitesse gaz fixée à  $U_G=49$  m/s. Les barres d'erreur sur les cordes moyennes représentent l'écart-type.

## V.5.2 Influence des tensioactifs

Nous examinons dans cette partie l'influence du C<sub>12</sub>TAB sur les vitesses, tailles et flux de gouttes. Seule la vitesse gaz a été variée pour les mesures avec ce tensioactif. La vitesse liquide est fixée à  $U_L=0,28$  m/s.

### V.5.2.1 Évolution des vitesses

Nous comparons en Figure V.31 les vitesses de gouttes avec et sans C<sub>12</sub>TAB. En dessous de 40 m/s, la vitesse moyenne des gouttes est sensible au dopage : on constate une

augmentation de 7 à 35% pour  $U_G=32$  m/s et  $U_G=15$  m/s respectivement. Les courbes des distributions de vitesses confirment aussi une augmentation des gouttes de grandes vitesses en présence de  $C_{12}TAB$ . Lorsque  $U_G$  est supérieur à 40 m/s, l'effet du tensioactif est moindre.

### V.5.2.2 Évolution des cordes et tailles de gouttes

L'influence du  $C_{12}TAB$  sur les cordes et tailles de gouttes peut être appréciée en Figure V.33. La corde moyenne ( $C_{10}$ ) et le diamètre de Sauter ( $D_{32}$ , Figure V.33a) sont réduits d'environ 60% avec  $C_{12}TAB$  pour l'ensemble des vitesses gaz. Les distributions montrent par ailleurs que cette diminution est due à une plus forte occurrence des cordes inférieures à 100  $\mu m$  environ, pour l'ensemble des régimes. Le  $C_{12}TAB$  semble donc avoir pour effet la formation de gouttes de plus faibles tailles qu'en eau pure, comme ce qui a été vu par diffraction laser (cf. Figure V.14). En outre, la dépendance du diamètre de Sauter à la vitesse gaz  $D_{32} \propto U_G^{-1,8}$  a été précédemment obtenu pour l'eau pure, elle reste identique avec  $C_{12}TAB$ .

Toutefois, le nombre de cordes de grandes tailles n'augmente pas, contrairement à ce qui a été observé par imagerie et par diffraction laser pour les tailles dans les mêmes conditions (cf. Figures V.6 et V.16). Ce qui est étonnant, car si l'origine de ces grandes tailles semblait pouvoir être expliquée par la réduction de la fréquence de brisure du jet liquide par le tensioactif, résultant en des structures liquides détachées du jet plus grandes, nous devrions retrouver les mêmes effets ici sur l'axe de l'injecteur liquide. Deux hypothèses sont possibles pour expliquer que ces variations de grandes tailles ne sont pas retrouvées via les mesures par sonde optique :

- les populations de gouttes de grandes tailles mesurées par imagerie et diffraction ne sont pas localisées sur l'axe de l'injecteur mais plutôt en bord de spray : les deux techniques possèdent une étendue radiale de mesure est importante (20 mm en imagerie, plusieurs fois la largeur de spray pour la diffraction laser), contrairement à la sonde qui ne mesure que les inclusions au centre du spray (cf. Figure V.2).
- et/ou les particules présentent des formes complexes (non-sphériques), comme ce qui a été montré en Figure V.7c. Dans ce cas, la valeur de la corde vue par la sonde est très éloignée de la taille mesurée par imagerie estimée à partir de la surface totale, comme l'illustre la Figure V.32.

Si l'on regarde les images du processus d'atomisation, les plus grandes structures arrachées du jet liquide semblent généralement avoir une trajectoire située sur l'axe de l'injecteur liquide (voir par exemple les images du processus en Figure V.4, pour une vitesse gaz de 40 m/s). Il semble donc peu probable que l'augmentation du nombre de grandes tailles vue par imagerie et diffraction soit due à une localisation de ces inclusions en bord de spray. Nous pensons plutôt que la seconde hypothèse est la raison de ces différences dans les écarts de distributions de tailles entre eau pure et  $C_{12}TAB$ .

### V.5.2.3 Corrélations cordes-vitesses

La Figure V.34 propose les corrélations entre cordes et vitesses de gouttes. Autrement dit, une corde moyenne est attribuée à chaque classe de vitesse de goutte. Les cordes convergent sur chaque classe de vitesse dans un intervalle de 5%, excepté les données pour  $U_G=15$  m/s, qui ne sont donc pas montrées. L'on constate que les grandes cordes de gouttes sont associées aux plus faibles vitesses de gouttes et inversement, pour les trois vitesses gaz affichées. Concernant l'effet du tensioactif, les tendances des corrélations sont très similaires en eau pure et avec  $C_{12}TAB$ , et le dopage induit une réduction de corde équivalente sur chaque classe de vitesse. Pour la plus grande vitesse gaz  $U_G=66$  m/s cependant, les différences de cordes se font principalement sur les plus faibles vitesses de gouttes (inférieures à 30 m/s).

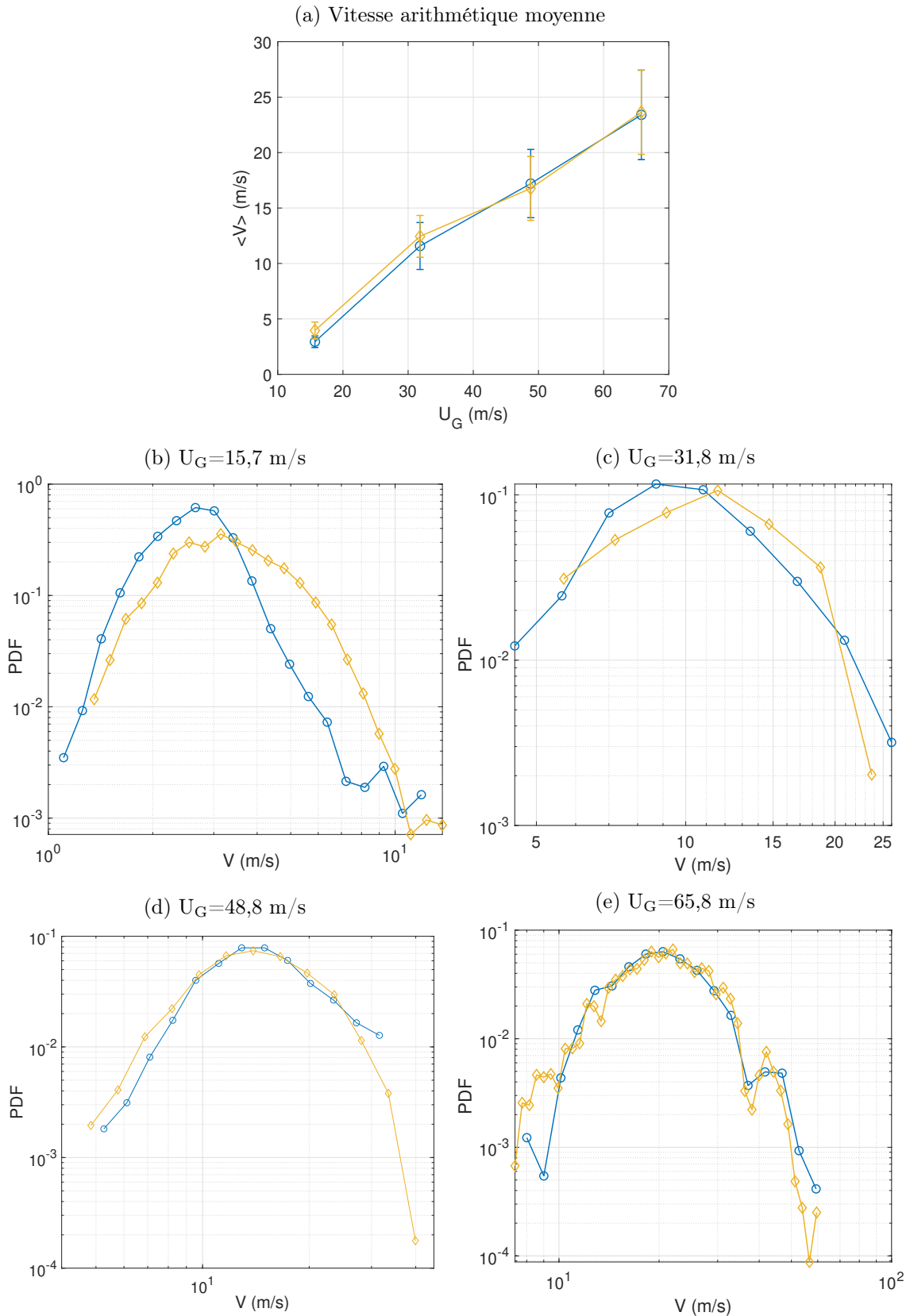


FIGURE V.31 – Vitesse moyenne de goutte en fonction de la vitesse gaz (a), et distributions (b-e). Eau pure (bleu),  $C_{12}TAB$ ,  $c=2.CMC$  (or).  $U_L=0,28$  m/s. Distance de mesure variée avec les vitesses liquide et gaz :  $z=4\langle L_I \rangle_{pure}$ . Mesures par sonde optique.

#### V.5.2.4 Nombre d'inclusions par classes de tailles et vitesses de gouttes

Dans cette partie, nous proposons de calculer le nombre moyen par unité de temps de gouttes (ou densité de gouttes en nombre) de tailles  $R$  et vitesses  $V$  avec et sans



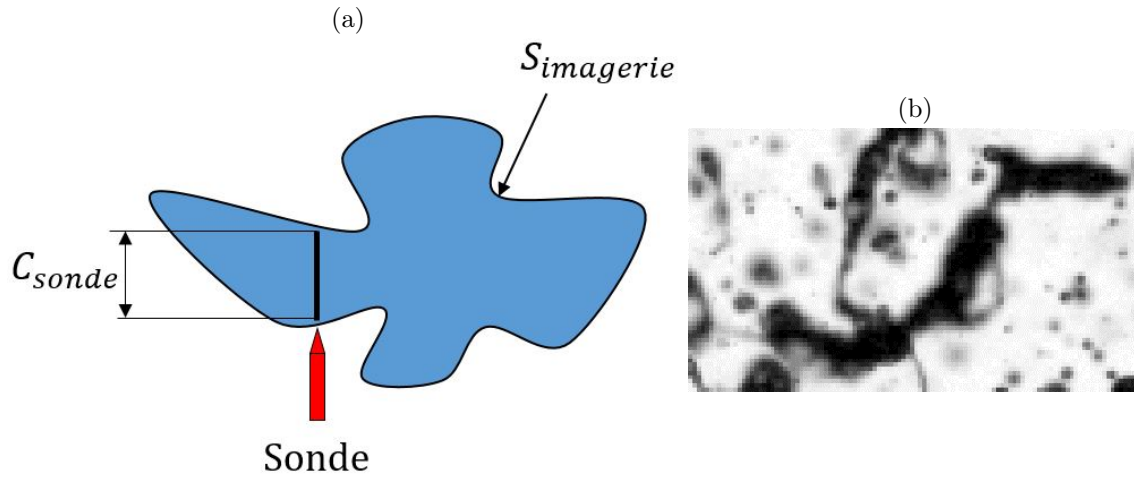


FIGURE V.32 – (a) Illustration de l’interaction possible d’une particule de forme non sphérique et fortement distordue avec la sonde optique, et vue par l’imagerie.  $C$  : corde,  $S$  : surface de la particule. (b) Image d’une particule liquide fortement distordue.

tensioactif. Cette quantité peut être estimée sous certaines hypothèses, dans le cas où les tailles et vitesses de gouttes ne sont pas corrélées :

- la sonde est un capteur idéal,
- l’écoulement est développé,
- les inclusions sont sphériques et ont une trajectoire rectiligne suivant  $z$ ,
- les tailles et vitesses des inclusions ne sont pas corrélées avec la position,
- la densité en nombre et le flux sont constants, ou varient linéairement dans le spray selon la position radiale.

Sous ces conditions, le nombre de gouttes de taille  $R$  et de vitesse  $V$  détectées est donné par l’expression :

$$N(R, V) = N_d P_d(R, V) \quad (\text{V.12})$$

où  $N_d$  est la fréquence d’arrivée de gouttes, et  $P_d(R, V)$  la probabilité de mesurer une goutte de taille  $R$  et de vitesse  $V$ .

Les résultats du nombre de gouttes moyen par classe  $(D, V)$  normalisé par le nombre de gouttes total détecté sont présentés en Figure V.35 avec et sans  $C_{12}\text{TAB}$ , pour les vitesses gaz  $U_G=32, 49$  et  $66$  m/s. Les données pour la vitesse gaz  $U_G=15$  m/s n’ont pu être exploitées, dues à une mauvaise convergence des tailles par classe de vitesse. La répartition de  $n_d(D, V)$  dans l’espace  $(D, V)$  en eau seule est similaire pour les trois vitesses gaz étudiées (Figures V.35a, c et e), et peut être dépeinte en deux zones où le nombre de gouttes par classe de tailles et vitesses est significatif, formant une distribution en forme de  $L$  sur l’espace  $(D, V)$  :

- une première zone de faibles vitesses de gouttes comprises entre 10 et 30 m/s, associées à un nombre significatif de gouttes détectées réparti entre des diamètres allant de 50 à 500  $\mu\text{m}$  pour  $U_G=32$  et 49 m/s, 50 à 300  $\mu\text{m}$  pour  $U_G=66$  m/s.
- une seconde zone de vitesses de gouttes plus élevées ( $V > 15$  m/s pour  $U_G=32$  m/s,  $V > 25-30$  m/s pour  $U_G=49$  et 66 m/s) associées à de faibles diamètres (environ 100-150  $\mu\text{m}$  ou moins).

Avec ajout de tensioactif (Figures V.35b, d et f), ces deux zones se réduisent en une, d’une part bien plus concentrée autour des faibles tailles ( $D < 200$   $\mu\text{m}$  pour  $U_G=32$  et 49 m/s,  $D < 100$   $\mu\text{m}$  pour  $U_G=66$  m/s), et située vers de plus faibles vitesses de gouttes pour la vitesse gaz  $U_G=66$  m/s : la plus forte densité de gouttes se situe entre 25 et 30 m/s en eau pure, contre 17-25 m/s avec  $C_{12}\text{TAB}$  (coeur jaune). Ces résultats sont consistants avec les corrélations taille-vitesse obtenues en Figure V.34.

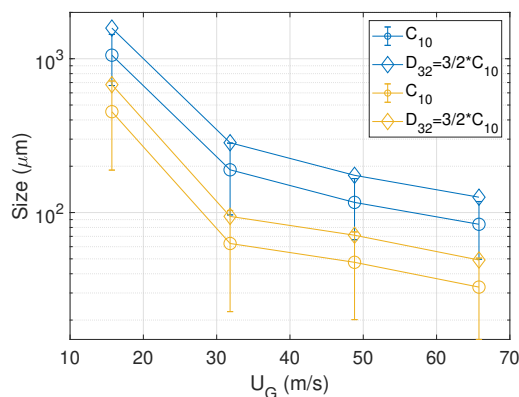
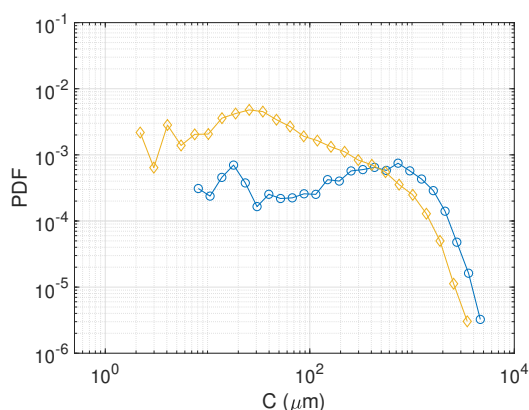
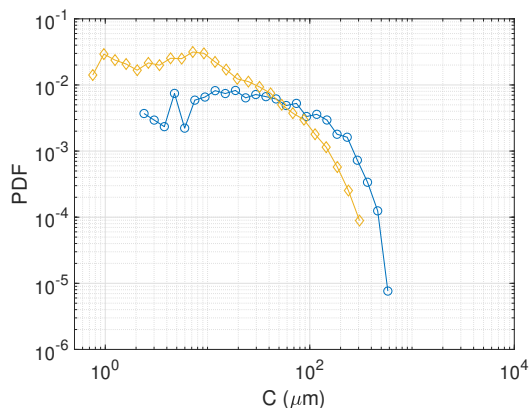
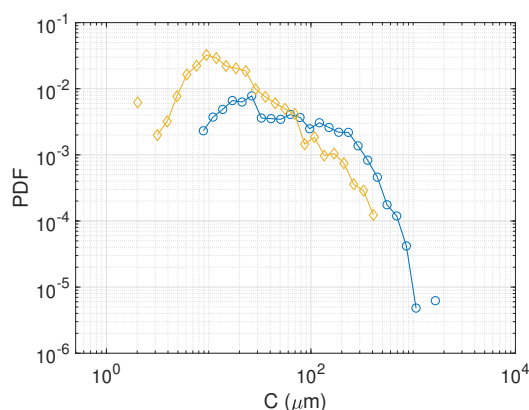
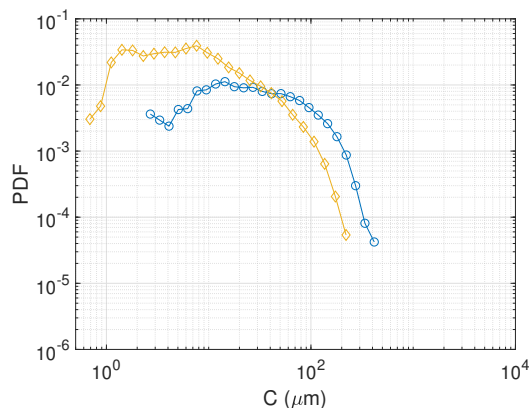
(a)  $C_{10}$  ( $\circ$ ) et  $D_{32}$  ( $\diamond$ )(b)  $U_G=15,7$  m/s(d)  $U_G=48,8$  m/s(c)  $U_G=31,8$  m/s(e)  $U_G=65,8$  m/s

FIGURE V.33 – Corde moyenne et diamètre de Sauter des gouttes en fonction de la vitesse gaz (b), et distributions (b-e). Eau pure (bleu),  $C_{12}TAB$ ,  $c=2$  cmc (or).  $U_L=0,28$  m/s. Distance de mesure variée avec les vitesses liquide et gaz :  $z=4 \cdot \langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ . Mesures par sonde optique.

Ce tensioactif induit donc un ré-agencement de la répartition des populations de gouttes dans l'espace des tailles et vitesses des inclusions, d'avantage regroupé autour des plus faibles diamètres et de la vitesse moyenne. Il peut s'expliquer par le choix de la distance de mesure. Les mesures ont été réalisées à distance fixe en eau pure et avec tensioactif ( $z=4 \cdot L_{I_{\text{pure}}}$ ). Or, la longueur de brisure moyenne augmente en présence de  $C_{12}TAB$ , de l'ordre de 40%. Le temps de vol des gouttes entre la brisure du jet liquide et la position de la mesure est donc significativement plus faible dans le cas du dopage qu'en eau pure. La quantité de mouvement transférée de la phase gaz aux gouttes est alors plus faible qu'en

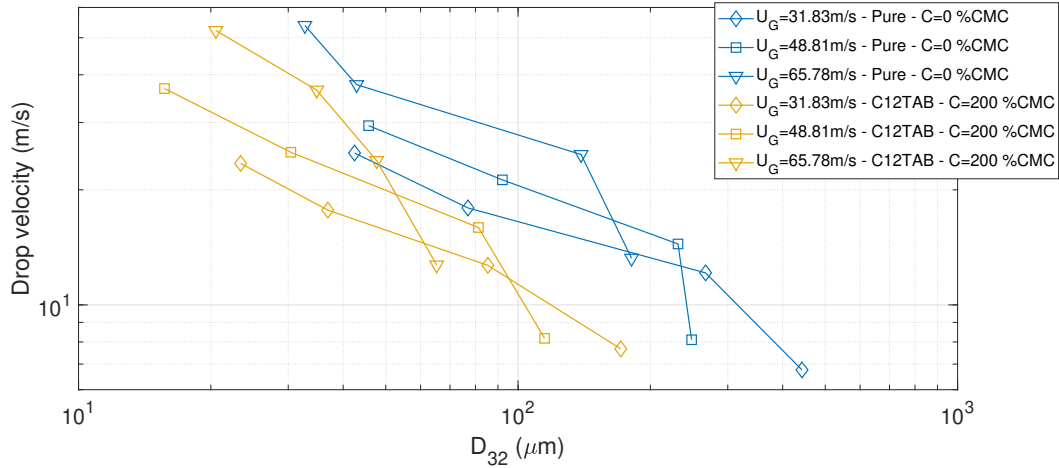


FIGURE V.34 – Corrélations corde-vitesse, eau pure (bleu) et C<sub>12</sub>TAB, c=2 cmc (or). Vitesse liquide U<sub>L</sub>=0,28 m/s. Distances de mesures variées avec les vitesses liquide et gaz : z=4<L<sub>I</sub>><sub>pure</sub>.

eau pure, ce qui explique la tendance observée d'un décalage général des vitesses de gouttes (de toutes tailles) vers de plus faibles vitesses avec C<sub>12</sub>TAB.

#### V.5.2.5 Flux par classes de tailles et vitesses de gouttes

Le flux par classes de tailles peut également être estimé comme suit, dans le cas où tailles et vitesses d'inclusions ne sont pas corrélées et sous les hypothèses énoncées dans la partie V.5.2.4 :

$$j_L(R) = n(R) \frac{4}{3} \pi R^3 \bar{V} = \alpha(R) \bar{V} \quad (\text{V.13})$$

où  $n(R) = P(R)n_0$  est la densité de gouttes par classe de taille, avec  $n_0 = \alpha / (\frac{4}{3} \pi \bar{R}^3)$  le nombre de gouttes par mètre cube, et  $\bar{V}$  est la vitesse arithmétique des inclusions.

Les comparaisons des flux par classe de taille en eau pure et avec C<sub>12</sub>TAB pour les vitesses gaz U<sub>G</sub>=49 et 66 m/s sont présentées en Figure V.36. Les acquisitions aux vitesses gaz U<sub>G</sub>=15 et 32 m/s n'ayant pas été enregistrées en continu mais par intervalles de très courte durée (environ 2 à 3 fois le temps liquide de goutte moyen), déclenchés à la détection d'une goutte, le flux estimé ne peut être valide à partir de telles conditions d'acquisition.

Tout d'abord, le flux local (toutes tailles de gouttes confondues) est très différent entre l'eau pure et le C<sub>12</sub>TAB pour les deux vitesses gaz étudiées, peut être car la répartition spatiale du spray est changée en présence de tensioactif.

Concernant la répartition du flux selon les tailles, le flux avec C<sub>12</sub>TAB est d'avantage distribué vers les faibles diamètres (<400 μm) comparativement à l'eau pure, ce pour les deux vitesses gaz. Ces résultats montrent que les gouttelettes de faible diamètre présentent un flux plus important qu'en eau pure. A l'inverse, le flux des grandes tailles (>400-500 μm) est moindre relativement au flux total. Cependant, la mesure a été réalisée au centre du spray. Nous n'avons pas d'information sur les flux sur tout un diamètre de spray avec tensioactif, ce qui serait nécessaire pour une compréhension globale de l'impact du dopage sur le flux.

## V.6 Discussion

Dans cette partie, nous tentons de comprendre les effets spécifiques induits par chaque tensioactif sur les tailles de gouttes. Nous rappelons que le C<sub>16</sub>TAB (c= 2 cmc) ne modifie pas significativement la taille des gouttes. Tandis que le SDS (c= 1 cmc) et le C<sub>12</sub>TAB (c=

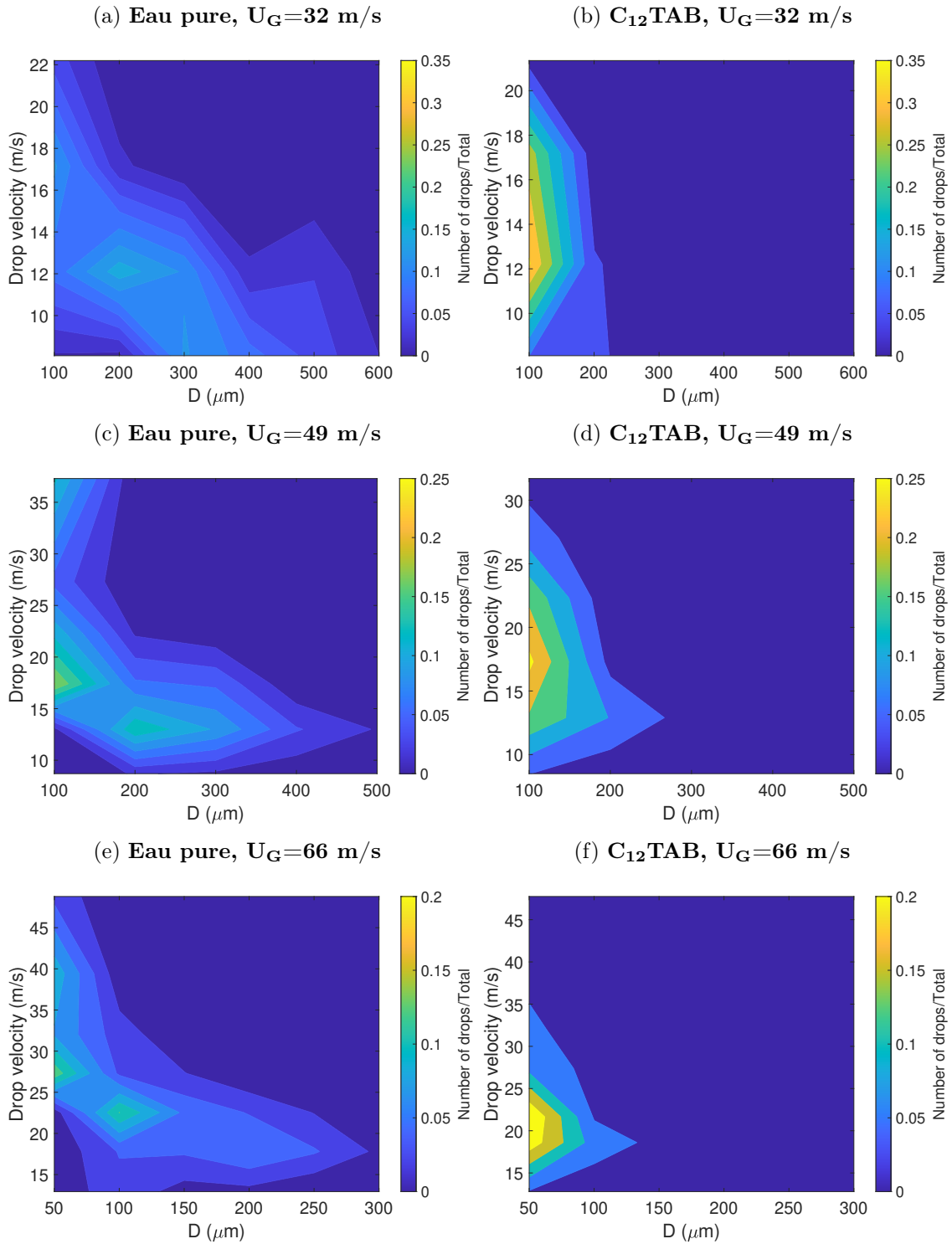


FIGURE V.35 – Nombre de gouttes par unité de temps par classe de tailles, normalisé par le nombre de gouttes total. Pour une même vitesse gaz  $U_G$ , l'échelle de couleur est identique en eau pure (gauche) et avec tensioactif (droite). Vitesse liquide  $U_L=0,28$  m/s. Distances de mesures variées avec les vitesses liquide et gaz :  $z=4 \cdot \langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ .

2 cmc) entraînent tous deux une augmentation des faibles tailles ( $2 < D < 10 \mu m$ ) jusqu'à une vitesse gaz de 50 m/s. Les techniques d'imagerie et de diffraction laser montrent en outre que le SDS et le  $C_{12}TAB$  présentent la particularité de modifier la proportion de grandes tailles ( $1000 < D < 2500 \mu m$ ). Nous proposons une hypothèse pour expliquer chaque changement de tailles de gouttes crée par ces molécules :

- Une hypothèse pour expliquer l'augmentation de faibles tailles ( $2 < D < 10 \mu m$ ) par

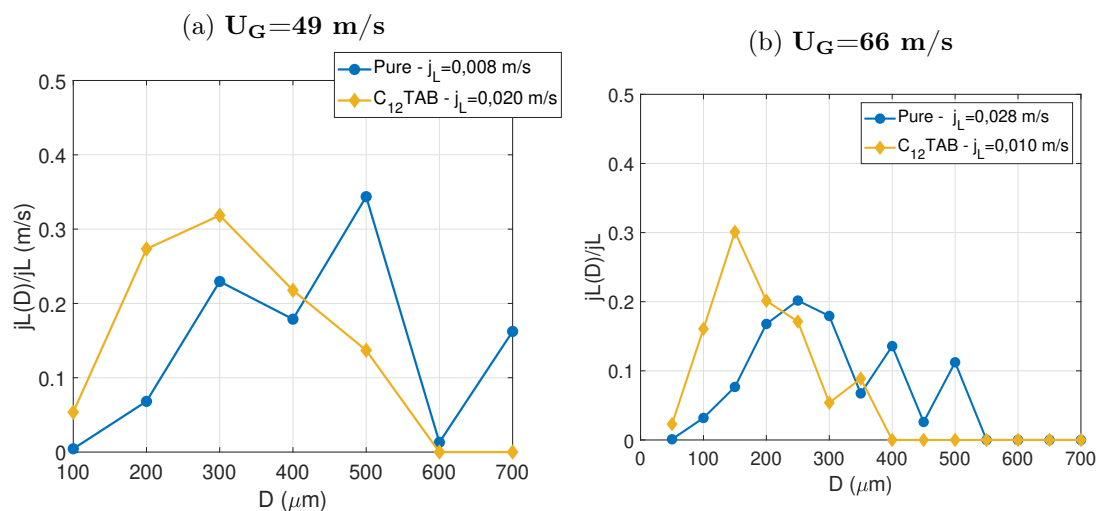


FIGURE V.36 – Flux de gouttes détectées par classes de tailles, normalisé par le flux local total  $j_L$ . Eau pure versus  $C_{12}TAB$ . Vitesses gaz  $U_G=49$  m/s (a) et  $U_G=66$  m/s (b). Vitesse liquide  $U_L=0,28$  m/s. Distances de mesures variées avec les vitesses liquide et gaz :  $z=4 \cdot \langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ .

le SDS et le  $C_{12}TAB$  est un effet des tensioactifs sur le mécanisme d'épluchage des vagues formées par l'instabilité de Kelvin-Helmholtz, mais aussi de l'épluchage de l'interface du jet soumis au flapping. Ce mécanisme génère les gouttes de plus faibles tailles dans le spray, et la taille des gouttes issues de l'épluchage évolue proportionnellement à  $\sigma^{1/3}$  [61], ou  $\sigma^{1/2}$  [35]. Ces éléments permettraient d'expliquer qu'un effet spécifique des tensioactifs sur les populations de gouttes de faible diamètre est observé lorsque la tension de surface est réduite.

- Concernant les variations de grandes tailles de gouttes ( $1000 < D < 2500 \mu\text{m}$ )
  - ◊ il a été vu dans le chapitre III que la fréquence de brisure du jet liquide est significativement réduite en présence de  $C_{12}TAB$  (réduction de l'ordre de 50%). Les données pour le SDS ne sont pas disponibles. Il est donc possible que cet effet sur la structure du jet induise un changement dans la formation des gouttes issues de la rupture de l'extrémité du jet. Nous avons également mis en évidence l'impact de la tension de surface sur la longueur de brisure du jet, ce qui indique que ces tensioactifs sont adsorbés avant la rupture du jet. Nous pensons que les augmentations de grandes tailles observées par imagerie et diffraction sont dues à des gouttes de formes distordues, comme argumenté précédemment (cf. Figure V.32), car ces variations ne sont pas retrouvées par sonde optique.
  - ◊ un effet lié à la visco-élasticité peut également contribuer au changement de tailles de gouttes issues de la rupture du jet. Battal *et al.* [6] et Dravid *et al.* [25] ont montré, dans le cas de la brisure d'un filament liquide (brisure par instabilité Rayleigh-Plateau), un effet du coefficient élastique sur la taille de la goutte satellite issue de la rupture due à une diminution du taux de croissance de l'instabilité de Rayleigh-Plateau, et sur la vitesse interfaciale du jet (cf. section I.3.2). Mais les informations connues de la littérature pour les tensioactifs utilisés ici sont insuffisantes.

SDS et  $C_{12}TAB$  modifient significativement la granulométrie, probablement car leurs temps d'adsorption sont courts devant les temps associés aux mécanismes de formation de gouttes. Ces derniers sont illustrés en Figure V.37. Globalement, les particules liquides détachées du jet ont trois origines :

- l'épluchage des vagues formées par l'instabilité de Kelvin-Helmholtz proche injecteur

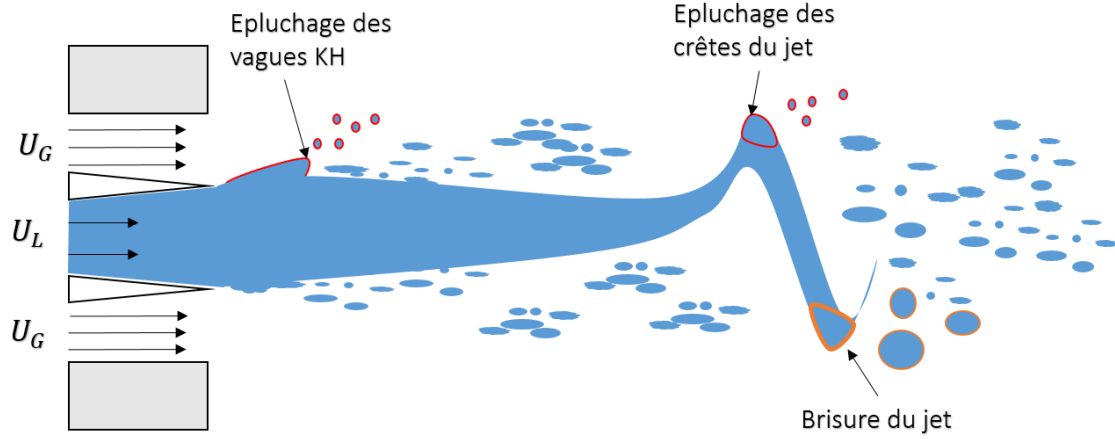


FIGURE V.37 – Illustration des mécanismes de formation des gouttes. Épluchage des vagues formées par instabilité de Kelvin-Helmholtz, épluchage des crêtes du jet dans la zone de flapping, et brisure du jet en plus grosses structures.

- l'épluchage des crêtes formées plus en aval par l'instabilité de flapping, elle même issue de l'instabilité de Kelvin-Helmholtz.
- la rupture du jet résiduel en gouttes, au voisinage de la longueur de brisure du jet produisant en moyenne des tailles supérieures à celles issues de l'épluchage.

Dans le but de vérifier la validité des hypothèses émises plus haut, nous comparons en Figure V.38 les temps d'adsorption de chaque tensioactif utilisé dans l'étude du spray aux temps typiques de rupture des ligaments épluchés et de pulsation du jet liquide, mais également aux temps de développement des vagues Kelvin-Helmholtz et des ligaments par l'instabilité de Rayleigh-Taylor sur les vagues issues du cisaillement, de façon similaire à ce qui a été fait en section III.5 du chapitre III. Nous rappelons les expressions de ces différents temps typiques :

- l'instabilité de Kelvin-Helmholtz correspond aux vagues axiales formées proche de l'injecteur, et son temps de développement est estimé comme l'inverse de la fréquence dominante mesurée :

$$\tau_{KH} = 1/f_{KH \text{ pure}} \quad (\text{V.14})$$

- l'instabilité de Rayleigh-Taylor correspond à la formation de ligaments, dont le temps est estimé à partir du modèle de Hong [35] comme l'inverse du taux de croissance de l'instabilité :

$$\tau_{RT} = 1/\omega_{RT \text{ pure}} \quad (\text{V.15})$$

avec

$$\omega_{RT} = (2/3\sqrt{3})^{1/2} (\frac{\rho_L}{\sigma})^{1/4} a^{3/4} \quad (\text{V.16})$$

$a$  est l'accélération subie par la vague, dont la formulation est :

$$a = \frac{1}{2} \frac{C_d \rho_G}{b \rho_L} (U_G - U_C)^2$$

$C_d$  est le coefficient de traînée, pris égal à 2 par Hong [35].  $U_C$  est la vitesse de convection [24]. La grandeur  $b$  est l'épaisseur de nappe, proportionnelle à la longueur d'onde de l'instabilité de Kelvin-Helmholtz si l'on s'intéresse à l'épluchage des vagues formées par l'instabilité de KH :

$$b = \alpha_n \lambda = \alpha_n \cdot B \cdot \delta_G \cdot \sqrt{\rho_L / \rho_G}$$

Pour les injecteurs de géométrie co-axiale,  $B=2$  et  $\alpha_n=0.2$ . L'épaisseur de vorticit  est d termin e   partir des mesures r alis es par Delon [22] au fil chaud (Annexe C), voir section III.5. L' pluchage du jet d    l'instabilit  Rayleigh-Taylor n'appara t qu'au dessus de  $U_G=25-30$  m/s.

Si l'on souhaite d terminer le taux de croissance de l'instabilit  de Rayleigh-Taylor   la cr te du jet dans la zone de flapping (voir Figure V.37), l' paisseur de nappe  $b$  est diff rente et peut  tre approch e comme une fraction de l' paisseur initiale du jet liquide, par exemple  $b = 0,1H_L$ . L'on obtient pour de l'eau pure et une vitesse gaz comprise entre 30 et 66 m/s, un temps typique compris entre  $2.10^{-3}$  et  $6.10^{-4}$  s ce qui est tr s proche des temps de d veloppement des vagues Rayleigh-Taylor issues des vagues KH.

- le temps de pincement des ligaments form s, estim  par Marmottant & Villermaux [61] :

$$\tau_b \approx (\rho_L d_0^3 / \sigma)^{1/2} \quad (\text{V.17})$$

avec  $d_0$  le diam tre  quivalent du ligament  quivalent   la longueur d'onde des ondulations transverses   l' coulement des vagues :

$$d_0 \approx \lambda_{\perp} \approx 0,1 \delta_G We_{\delta}^{-1/3} (\rho_L / \rho_G)^{1/3} \quad (\text{V.18})$$

$We_{\delta}$  est le nombre de Weber bas  sur l' paisseur de vorticit  gaz :  $We_{\delta} = \rho_G U_G^2 \delta / \sigma$ .

- le temps de pulsation du jet (inverse de la fr quence de brisure du jet) :

$$\tau_{\text{puls}} = 1 / f_{L_B \text{ pure}} \quad (\text{V.19})$$

### Ordres de grandeurs de tailles et flux de gouttes :

Le diam tre moyen des gouttes issues de l' pluchage des vagues KH peut  tre estim    partir de l' quation V.18 (Marmottant & Villermaux [61]). Pour une vitesse gaz comprise entre 30 m/s (d marrage de l' pluchage) et 66 m/s et de l'eau pure, l'on obtient  $D_{10} = 26 - 75 \mu m$ . Avec  $C_{12}TAB$  ( $c=2$  cmc,  $\sigma_{\infty} = 38$  mN/m),  $D_{10} = 21 - 61 \mu m$  pour les m mes vitesses gaz. Ce qui est proche des plus faibles tailles mesur es par diffraction laser et sonde optique.

En utilisant cette fois la relation obtenue par Hong *et al.* [34] :

$$D_{32} \propto \lambda_{RT} \propto \delta_G (\rho_L / \rho_G)^{0,25} We_{\delta}^{-0,5} \quad (\text{V.20})$$

Les mesures exp rimentales de la taille selon les param tre  $\delta_G$  et  $We_{\delta}$  permettent d'estimer pour de l'eau pure, et pour une vitesse gaz comprise entre 30 m/s et 66 m/s, un SMD  $D_{32} = 200 - 720 \mu m$ . Et pour le  $C_{12}TAB$  ( $c=2$  cmc,  $\sigma_{\infty}=38$  mN/m),  $D_{32} = 160 - 400 \mu m$  en supposant une adsorption compl te.

Si l'on s'int resse aux longueurs d'onde de l'instabilit  de Rayleigh-Taylor des vagues KH et des cr tes du jet dans la zone de flapping, estim e comme suit :

$$\lambda_{RT} = 2\pi \left( \frac{3\sigma}{\rho_L a} \right)^{1/2} \quad (\text{V.21})$$

Les valeurs calcul es pour les deux types de vagues sont tr s proches sur la plage de vitesses gaz 30-66 m/s : toutes deux varient de  $2.10^{-3}$  m (pour  $U_G = 30$  m/s)    $1.10^{-3}$  m (pour  $U_G=66$  m/s).

Quant au flux d'épluchage des vagues KH, il peut être estimé à partir des travaux de Ben Rayana [7] :

$$\phi \approx 5(\rho_G/\rho_L)^{0,5}(U_G - U_L)/D_{32}^3 \quad (\text{V.22})$$

Nous obtenons un flux  $\phi = 1,2 \cdot 10^{-8} \text{ \#}/(\mu\text{m}^2 \cdot \text{s})$  en eau pure et  $\phi = 7 \cdot 10^{-8} \text{ \#}/(\mu\text{m}^2 \cdot \text{s})$  pour  $U_G=30 \text{ m/s}$ . Pour  $U_G=66 \text{ m/s}$  en eau pure,  $\phi = 1,2 \cdot 10^{-6} \text{ \#}/(\mu\text{m}^2 \cdot \text{s})$  et avec  $\text{C}_{12}\text{TAB}$   $\phi = 2,4 \cdot 10^{-6} \text{ \#}/(\mu\text{m}^2 \cdot \text{s})$ . Le flux lié à l'épluchage devrait donc être augmenté d'un facteur deux à six avec dopage.

Les temps de développement des vagues sont donnés en Figure V.38, mais nous nous intéressons dans ce qui suit aux temps de pulsation du jet  $\tau_{puls \text{ pure}}$  et de rupture des ligaments issus des vagues formées par l'instabilité de Kelvin-Helmholtz  $\tau_{RT_{breakup \text{ pure}}}$  : comme ce qui a été vu dans le chapitre III, le tensioactif peut réduire significativement la tension de surface si il est adsorbé avant la rupture de la structure liquide dans laquelle il est transporté, ce qui justifie de considérer les temps de rupture dans le cas de l'eau pure. Les temps de développement des ligaments formés par instabilité des crêtes du jet ne sont pas indiqués, mais sont proches des temps de rupture des ligaments KH ( $\tau_{RT \text{ breakup}}$ ).

Le premier constat est que le temps d'adsorption du  $\text{C}_{16}\text{TAB}$  est trop long devant les temps de pulsation du jet et de rupture des ligaments. Le temps d'adsorption du SDS est plus rapide que le temps de pulsation du jet d'un facteur trois, tandis que le  $\text{C}_{12}\text{TAB}$  est environ 10 fois plus rapide. A priori, le  $\text{C}_{12}\text{TAB}$  a bien plus de temps que le SDS pour peupler l'interface du jet entre deux ruptures successives, bien que suivant ces données le SDS pourrait également montrer un effet sur la fréquence de brisure du jet liquide. Nous n'avons pas accès à cette information (nous avons vu que les mesures de la fréquence de brisure avec SDS et pour  $U_L=0,28 \text{ m/s}$  étaient peu fiables, cf. Figure A.7a).

Les temps d'adsorption du SDS et du  $\text{C}_{12}\text{TAB}$  sont globalement du même ordre que le temps de rupture des ligaments  $\tau_{RT \text{ break-up}}$ , ce qui rend possible l'adsorption avant la rupture du ligament et peut ainsi impacter la taille des populations issues de l'épluchage.

Dans un second temps nous reprenons les données des mesures par diffraction laser (cf. Figure V.23), et comparons les rapports de probabilités avec et sans tensioactif d'obtenir des gouttes de faibles tailles (2-10  $\mu\text{m}$ ), puis grandes (1000-2500  $\mu\text{m}$ ), aux rapports des temps de rupture-adsorption (rupture des ligaments et pulsation du jet). La Figure V.39 introduit ces résultats pour chaque tensioactif étudié dans ce chapitre. Nous rappelons que le flux de gouttes provenant de l'épluchage devient prépondérant devant celui des gouttes issues de la rupture du jet, à partir d'une vitesse gaz d'environ 25 m/s, i.e. pour toutes les vitesses gaz étudiées en Figure V.39

Concernant le  $\text{C}_{12}\text{TAB}$  (a) :

- le rapport du temps de pulsation et de son temps d'adsorption présente un facteur d'ordre 10 pour l'ensemble des vitesses gaz. Nous constatons une augmentation des grandes tailles pour les vitesses gaz supérieures à 50 m/s seulement. Pourtant, aucun effet n'est vu sur les grandes tailles pour les vitesses gaz inférieures à 50 m/s. A l'inverse, le nombre de grandes tailles diminue sur cette plage avec dopage.
- le rapport des temps de rupture des ligaments et d'adsorption suit exactement celui de l'augmentation des gouttes de tailles inférieures à 10  $\mu\text{m}$ . Ce qui semble indiquer que l'apparition de faibles tailles est bien causée par le mécanisme d'épluchage.

Concernant le SDS (b) :

- le rapport du temps de pulsation et de son temps d'adsorption est d'au moins trois. Ici, le SDS présente une diminution des gouttes de grandes tailles pour toutes les vitesses gaz. Ne connaissant pas l'effet du SDS sur la fréquence de brisure du jet liquide, il est ici difficile d'attribuer la variation des tailles supérieures à 1000  $\mu\text{m}$  à un changement de pulsation du jet.
- Le rapport de l'augmentation des faibles tailles varie de 10 à 1 lorsque  $U_G$  est inférieur à 50 m/s. Le rapport des temps de rupture des ligaments et d'adsorption



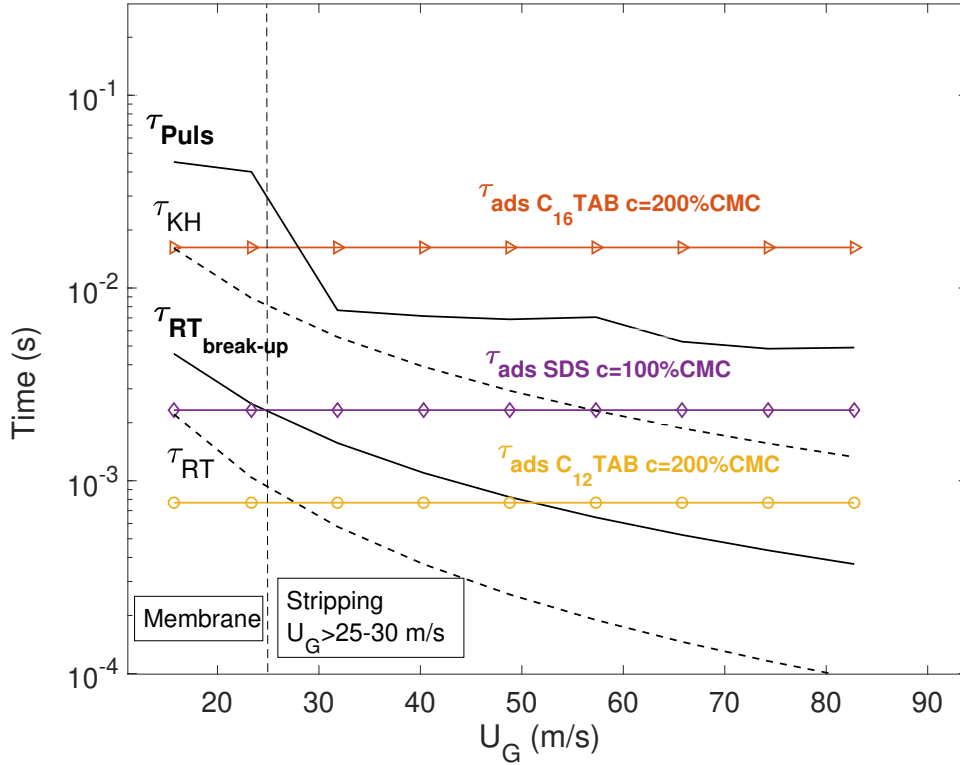


FIGURE V.38 – Temps caractéristiques d’adsorption de chaque tensioactif, comparés aux temps de pulsation du jet, de formation des vagues KH et RT et de rupture des ligaments épluchés (pour de l’eau pure), en fonction de la vitesse gaz. Pour une vitesse liquide  $U_L=0,28$  m/s.

vaut  $\approx 0,5-1$  sur la même plage de vitesses gaz. L’effet sur les faibles tailles est donc évident pour les vitesses gaz inférieures à 50 m/s, pourtant le temps d’adsorption est trop court devant le temps de rupture des ligaments. L’incertitude sur les estimations de temps peut être responsable de ces incohérences.

Concernant le  $C_{16}TAB$  (c), le temps d’adsorption est trop court devant ceux de pulsation et de rupture des ligaments, ce qui est cohérent avec l’absence de variation des tailles de gouttes en présence de ce tensioactif.

Puis les variations de tailles avec ajout de tensioactif sont cette fois tracées en fonction de la vitesse gaz, en Figure V.40. L’évolution des variations de grandes tailles ( $1000 < D < 2500$   $\mu m$ ) avec le rapport  $\tau_{puls}/\tau_{ads}$  est donné en Figure V.40a, celui des faibles tailles ( $2 < D < 10$   $\mu m$ ) avec le rapport  $\tau_{RTbreak-up}/\tau_{ads}$  en Figure V.40a :

- Sur la Figure V.40b, une diminution des gouttes de grandes tailles a lieu lorsque le rapport  $\tau_{puls}/\tau_{ads}$  devient supérieur à 1 (2 pour le SDS, 9-10 pour le  $C_{12}TAB$ ).
- En Figure V.40a, le nombre de gouttes de faibles tailles augmente clairement lorsque le ratio  $\tau_{RTbreak-up}/\tau_{ads}$  devient proche de 1 et au delà (0,2-0,3 pour le SDS, et supérieur à 1 pour le  $C_{12}TAB$ ). Ce qui indique que le mécanisme d’épluchage contrôle les variations des faibles diamètres de gouttes.
- Le temps d’adsorption du  $C_{16}TAB$  est environ 10 fois supérieur aux temps de pulsation et de rupture des ligaments. Cette molécule n’a aucun effet sur les deux populations de tailles de gouttes, ce qui montre que le tensioactif n’a pas atteint l’interface avant la rupture des ligaments, ni de l’extrémité du jet liquide (comme

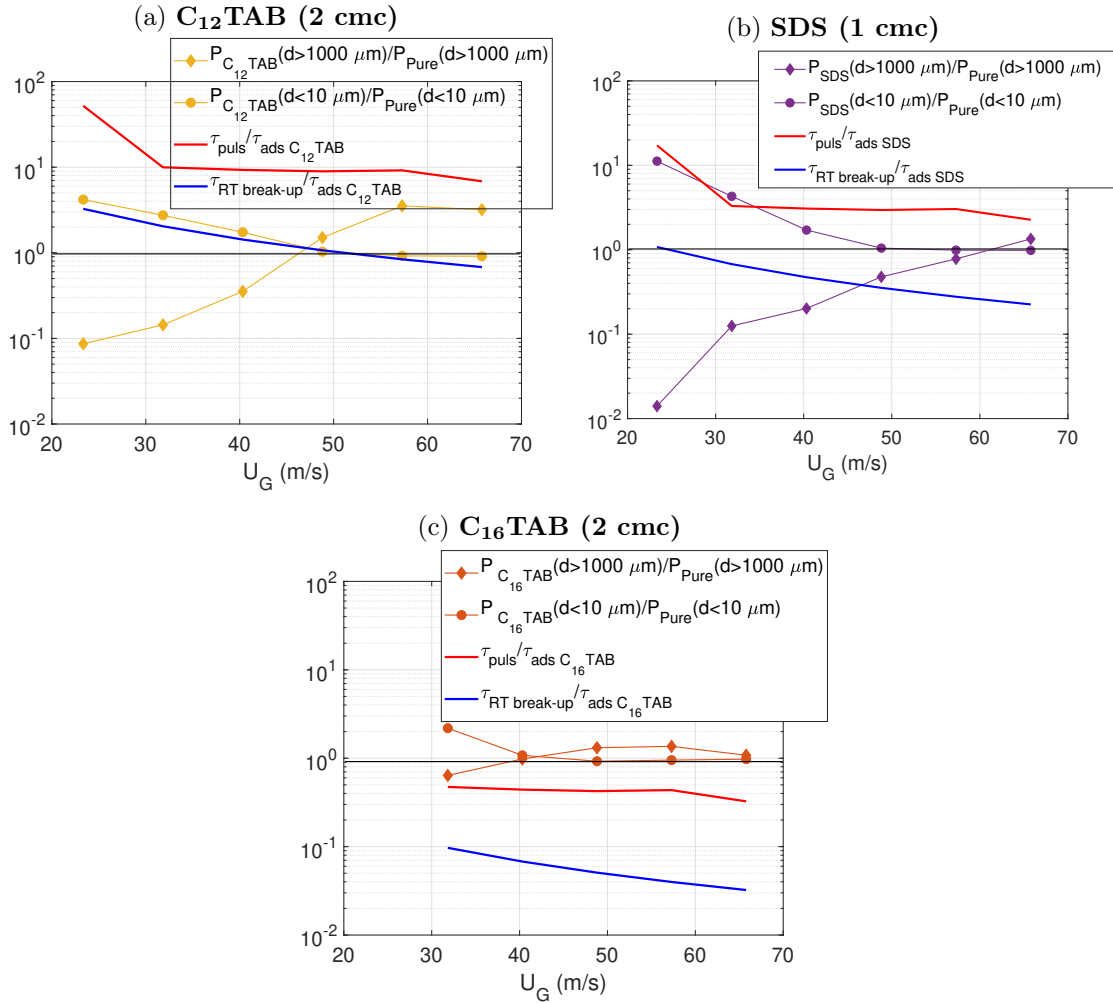


FIGURE V.39 – Rapports des probabilités d’obtenir des gouttes de tailles inférieures à  $10 \mu m$  et supérieures à  $1000 \mu m$  avec et sans tensioactif, comparés aux rapports des temps de rupture (ligaments et pulsation respectivement) et d’adsorption (pour de l’eau pure), en fonction de la vitesse gaz. Pour une vitesse liquide  $U_L=0,28 \text{ m/s}$ . Les probabilités de tailles sont calculées à partir des données de diffraction laser.

montré dans le chapitre III). D’où l’absence de variation des tailles de gouttes.

Le Tableau V.3 synthétise les effets des tensioactifs sur les tailles en fonction des temps hydrodynamiques et d’adsorption étudiés. Les conclusions suivantes peuvent être apportées :

- Les comparaisons des données montrent de façon consistante qu’il y a une augmentation de la proportion de gouttes de faibles tailles ( $2 < D < 10 \mu m$ ) lorsque le temps d’adsorption d’une molécule est faible devant celui de rupture du ligament. Une diminution de la tension de surface induit une réduction de la taille des gouttes issues du mécanisme d’épluchage. L’expérience montre donc que les tensioactifs augmentent le nombre de faibles tailles de gouttes lorsque le temps d’adsorption est court devant le temps de brisure des ligaments.
- Le dopage réduit le nombre de grandes tailles ( $1000 < D < 2500 \mu m$ ), lorsque le temps d’adsorption des tensioactifs est plus court que le temps de pulsation du jet. Cependant, le mécanisme responsable des ces variations de tailles n’est pas compris :
  - ◊ la fréquence de brisure du jet est réduite avec dopage, générant des structures de tailles plus importantes. Mais les mesures de la fréquence de brisure obtenues

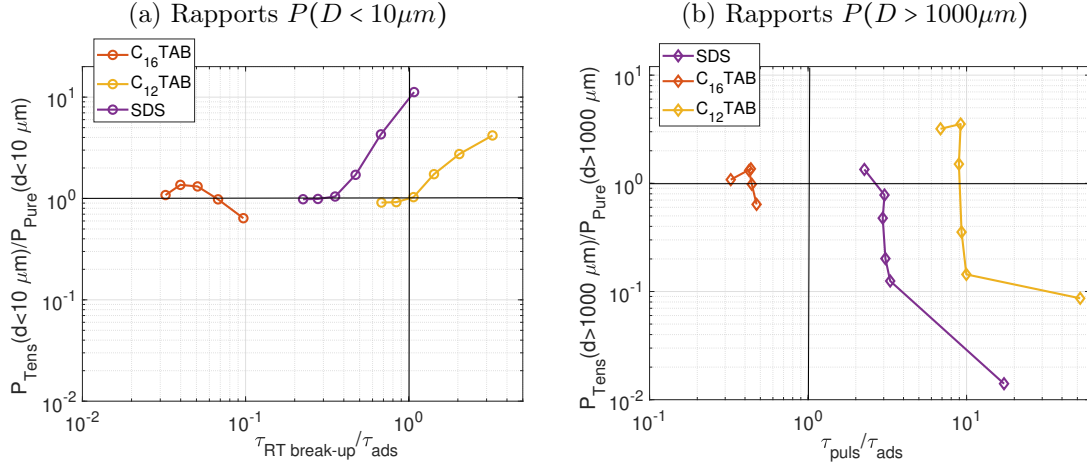


FIGURE V.40 – Rapports des probabilités d’obtenir des tailles comprises entre 1000 et 2000  $\mu m$  avec/sans tensioactif d’adsorption (pour de l’eau pure), en fonction des rapports de temps de pulsation/adsorption (a), et rapports des probabilités d’obtenir des gouttes de tailles comprises entre 2 et 10  $\mu m$  avec/sans tensioactif en fonction des rapports de temps de rupture des ligaments/adsorption (b). Pour une vitesse liquide  $U_L=0,28$  m/s, et  $z = 4 < L_I >_{\text{pure}}$ . Les probabilités de tailles sont calculées à partir des données de diffraction laser.  $U_G$  croît de droite à gauche sur les figures.

nues dans cette étude semblent être peu reproductibles et ne permettent pas de mettre en évidence réduction de cette fréquence et variation des grandes tailles de gouttes. De plus, une diminution de la fréquence de brisure avec dopage devrait conduire à plus de grosses gouttes (à débit liquide constant, une fréquence de brisure réduite implique des volumes de particules détachées plus importants). Or, nous constatons globalement une diminution des grandes tailles avec dopage lorsque le temps d’adsorption est plus court que le temps de pulsation du jet (Figure V.40b).

- ◊ la granulométrie par sonde optique ne révèle pas de variations de grandes tailles, contrairement à ce qui a été vu par imagerie et diffraction laser. Nous émettons l’hypothèse que les gouttes sont fortement distordues avec  $C_{12}TAB$ , ce qui résulte en des tailles différentes selon la technique de mesure. Une analyse des formes de gouttes serait donc nécessaire pour éclaircir ce point.
- ◊ des informations consistantes sur le coefficient élastique de chaque tensioactif et pour les concentrations utilisées ici (supérieures à la cmc) sont nécessaires pour comprendre l’effet possible de la visco-élasticité sur ces populations de gouttes.

TABLE V.3 – Synthèse des liens entre variations de tailles de gouttes et rapports des temps d’instabilités.  $P_d^+ = P(D > 1000\mu m)$ ,  $P_d^- = P(D < 10\mu m)$ .

	$C_{12}TAB$	SDS	$C_{16}TAB$
$\tau_{puls}/\tau_{ads}$	10	3	0,5
$P_d^+ \text{ tens} / P_d^+ \text{ pure}$	0,1-3	0,01-1	$\approx 1$ (0,6-1,5)
Conclusion	Corrélation		
$\tau_{RT \text{ breakup}}/\tau_{ads}$	1-3	0,1-1	0,01-0,1
$P_d^- \text{ tens} / P_d^- \text{ pure}$	1-3	1-10	$\approx 1$ (0,6-1,2)
Conclusion	Corrélation		

## V.7 Conclusion

Dans ce chapitre, trois techniques de mesures ont été utilisées pour caractériser le spray.

L'imagerie rapide a d'abord été utilisée afin de comparer l'évolution des tailles de gouttes avec C<sub>12</sub>TAB à des distances de mesure proportionnelles aux longueurs de jet moyennes de l'eau pure, puis avec ce tensioactif, pour trois vitesses gaz. Ainsi, une première caractérisation des tailles de gouttes a été rendue possible. Notamment, cette technique a révélé que le C<sub>12</sub>TAB génère un plus grand nombre de gouttes de tailles extrêmes comparé à l'eau pure. De plus, les distributions de tailles varient globalement peu aux distances proportionnelles aux longueurs de jet moyennes de l'eau pure ou du tensioactif. Cette technique ne permet de détecter que les tailles de gouttes supérieures à 40  $\mu\text{m}$ , mais est complémentaire à la diffraction laser car elle ne présente pas de limite pour la détection des grandes tailles. La diffraction laser a donc été utilisée pour mesurer des tailles comprises en 2 et 2500  $\mu\text{m}$ .

Les trois tensioactifs déjà utilisés dans le chapitre III ont été étudiés à des concentrations supérieures à la cmc, et ont présentés les effets suivants sur les tailles de gouttes :

- le C<sub>16</sub>TAB n'a pas d'effet sur les tailles de gouttes excepté à très faible vitesse gaz.
- SDS et C<sub>12</sub>TAB ont des effets notables sur le spray : à une distance de quatre fois la longueur de jet moyenne en eau pure, tous deux augmentent la probabilité de présence de gouttes de faibles diamètres (<100  $\mu\text{m}$ ), pour l'ensemble des vitesses d'injection gaz supérieures à 20 m/s, ce qui conduit à une forte réduction de la taille de goutte moyenne pour le SDS...
- ... le C<sub>12</sub>TAB, qui présente la particularité de générer de plus grandes tailles de gouttes (>500-1000  $\mu\text{m}$ , aux formes probablement distordues) pour des vitesses gaz supérieures à 40 m/s. Les deux effets se compensent, ce qui conduit à la même taille moyenne mesurée avec ce tensioactif et en eau pure.

Enfin, les mesures par sonde optique Doppler ont apporté des précisions quant à l'évolution du spray en eau pure puis avec ajout de C<sub>12</sub>TAB pour une concentration de 2 cmc, à une position de mesure de quatre fois la longueur de jet moyenne du jet en eau pure et sur l'axe de l'injecteur liquide. Notamment, nous avons vu que les vitesses des gouttes étaient affectées par la présence du tensioactif uniquement à faible vitesse gaz. L'effet sur les tailles est en revanche conséquent quelque soit le régime d'injection gaz, la corde et le diamètre de Sauter moyens étant significativement réduits par le tensioactif (de l'ordre de 60%). Cette réduction de la taille n'est pas homogène sur l'ensemble des distributions. En fait, seules les gouttes de plus faibles cordes (<100  $\mu\text{m}$ ) sont responsables de cette réduction de la taille moyenne, comme ce qui a été constaté avec les deux autres techniques. L'augmentation de la probabilité de présence de gouttes de grandes tailles avec dopage n'est cependant pas retrouvée ici pour des mesures sur l'axe, tandis que c'était le cas avec les deux autres méthodes. Les corrélations de tailles et vitesses montrent d'une part que tailles et vitesses des inclusions sont corrélées (les grands diamètres sont associés aux faibles vitesses et inversement), et que le C<sub>12</sub>TAB réduit la taille moyenne de goutte de façon homogène sur l'ensemble des gammes de vitesses de gouttes, excepté à forte vitesse d'injection gaz où les cordes de gouttes associées aux inclusions à vitesse élevée sont peu réduites avec dopage. Le nombre moyen de gouttes par classe de taille et vitesse de gouttes a été évalué, montrant un net regroupement des populations de gouttes avec le tensioactif C<sub>12</sub>TAB dans l'espace ( $D, V$ ) autour de la vitesse moyenne globale, ainsi qu'un décalage vers les plus faibles diamètres avec une plus faible dispersion qu'en eau pure. Enfin, le calcul du flux de gouttes par classes de tailles indique une nette augmentation du flux des gouttes de diamètres inférieurs à 200-300  $\mu\text{m}$  avec dopage.

Les résultats sont donc qualitativement consistants entre les trois techniques de granulométrie. Les effets notables du SDS et C<sub>12</sub>TAB sur les tailles peuvent s'expliquer par leurs effets en amont sur la structure du jet liquide. A l'inverse, le C<sub>16</sub>TAB n'avait pas montré d'effet significatif sur ce dernier excepté à faible vitesse gaz. Il ne semble pas non plus agir sur les tailles de gouttes.

Finalement, une comparaison des temps typiques de rupture des ligaments aux temps d'adsorption de chaque tensioactif montrent que le dopage influe sur le processus de formation des ligaments et *in fine* sur la taille des gouttes issues de la rupture des digitations, à condition que le temps d'adsorption soit plus rapide que les temps caractéristiques des processus hydrodynamiques. De façon similaire, une réduction des grandes tailles ( $1000 < D < 2500 \mu m$ ) est remarquée lorsque le temps d'adsorption du tensioactif est inférieur au temps typique de pulsation du jet, indiquant que ce dernier contrôle la formation de ces gouttes de grandes tailles. Mais le lien de causalité n'est pas encore compris.

Le phénomène d'atomisation est donc affecté par la présence de tensioactif lorsque le temps d'adsorption de ses derniers est suffisamment court devant les instabilités conduisant à la rupture du jet liquide, ou des ligaments, ce qui influe en conséquence sur le spray. Nous avons donc montré que le rapport entre temps d'adsorption et de rupture est un facteur déterminant dans la formation du spray.

# Conclusion générale et perspectives

L'atomisation assistée est un phénomène complexe, dont les mécanismes menant à la formation du spray sont pour certains toujours mal compris. Les investigations ont souvent été conduites en eau comme phase liquide, atomisée par de l'air (phase gaz). L'ajout de tensioactifs à la phase liquide complexifie le processus, car aux mécanismes hydrodynamiques s'ajoutent des mécanismes de transport et de rhéologie d'interface.

Plusieurs travaux ont porté sur l'influence des tensioactifs sur des écoulements de nappes ou de filaments liquides, ainsi que sur des sprays obtenus par injection pressurisée. Cependant, les effets du dopage observés sur le spray final restent mal compris. Les études en atomisation assistée sont quant à elles très peu nombreuses (Shavit & Chigier [79], Kulkarni *et al.* [45]). C'est pourquoi notre étude visait à quantifier expérimentalement l'impact de différents tensioactifs sur les mécanismes menant à la rupture du jet liquide en gouttes.

L'injecteur utilisé est de géométrie co-axiale, dont la section de l'écoulement gaz (air) et le diamètre de l'injecteur liquide (eau, eau/tensioactifs) ont été gardés constants tout au long de l'étude ( $H_L=H_G=5\text{ mm}$ ). Les conditions hydrodynamiques ( $U_L = 0, 1-0,9\text{ m/s}$ ,  $U_G = 15-70\text{ m/s}$ ) ont été sélectionnées d'une part dans le but de contrôler les fréquences des instabilités de Kelvin-Helmholtz par la vitesse d'injection gaz, et de flapping. D'autre part, elles assurent un temps de vie des nappes liquides avant leur rupture à priori suffisant pour permettre une réduction significative de la tension de surface par les molécules présentant les temps d'adsorption les plus courts.

Le choix des tensioactifs a donc porté sur deux premières molécules aux temps d'adsorption par diffusion et cinétique rapides ( $\tau_{ads} \approx 10^{-3}\text{ s}$ ) devant les temps de rupture du jet liquide, en particulier pour des concentrations supérieures à la concentration micellaire critique. Un troisième candidat à cinétique d'adsorption lente ( $\tau_k \approx 10^{-2}\text{ s}$ ) a ensuite été retenu dans le but de déterminer le mécanisme d'adsorption limitant. Des tentatives de caractérisation rhéologique ont également été entreprises. Seul l'analyse du C<sub>16</sub>TAB a pu fournir des résultats valides sur la rhéologie, qui ont confirmés que le transfert à l'interface par cinétique d'adsorption est le processus limitant pour cette molécule. La reproductibilité des mesures a par ailleurs été assurée par un procédé de dé-pollution du circuit d'injection liquide.

L'influence des tensioactifs sur la structure du jet liquide a dans un premier temps été caractérisée par imagerie rapide. Trois molécules ont été utilisées, à différentes concentrations. Des observations visuelles des images obtenues ont mis en évidence que tous les tensioactifs induisent un changement de mode de brisure du jet liquide à très faible vitesse gaz, transitant d'une rupture de type Rayleigh-Plateau à membrane pour  $U_G = 15\text{ m/s}$ .

Puis plusieurs caractéristiques du jet liquide ont été obtenues en eau pure et avec dopage. L'ajout de tensioactifs a tout d'abord montré que l'évolution des caractéristiques du jet (longueurs du jet intact et de sa brisure, amplitude de flapping, fréquences des instabilités notamment) reste inchangée lorsque les vitesses d'injection liquide et gaz sont variées. Les mesures des longueurs intacte et de brisure du jet moyennes ont ensuite mis en évidence un allongement en présence de SDS et C<sub>12</sub>TAB, d'autant plus important que la concentration est élevée (jusqu'à 20% avec SDS autour de la cmc, jusqu'à 40% avec

$C_{12}$ TAB pour une concentration de 2 cmc). Le  $C_{16}$ TAB ( $c=2$  cmc) n'a en revanche pas d'effet significatif, ce qui indique que l'adsorption n'est pas assez rapide avant la brisure du jet liquide et ne permet pas d'abaisser significativement la tension de surface. Après avoir confirmé l'évolution linéaire de  $L_I$  et  $L_B$  avec la vitesse liquide et leur comportement asymptotique avec la vitesse gaz au delà de  $U_G=30-40$  m/s, en eau seule puis avec dopage, nous avons confronté nos données expérimentales de longueurs de jet au modèle de Delon [22], basé sur une compétition entre temps de convection et temps de rupture par instabilité capillaire. Un bon accord a été obtenu entre prédictions et mesures (de l'ordre de 20%). En variant dans le modèle la valeur de la tension de surface à l'extrémité du jet liquide, un meilleur accord mesures-modèle est constaté en supposant une adsorption partielle du SDS avant brisure, et une adsorption complète du  $C_{12}$ TAB (de l'ordre de 10%). Les temps d'adsorption qui ont été estimés à partir de la littérature viennent conforter cette hypothèse. En ce qui concerne la fréquence de brisure du jet liquide, elle est réduite jusqu'à 50% en présence de  $C_{12}$ TAB et augmentée de 20% avec  $C_{16}$ TAB. Nous n'avons pas d'explication concernant ce dernier résultat. Les mesures de l'angle de jet et de l'amplitude du déplacement radial de ce dernier montrent une forte réduction de ces grandeurs avec  $C_{12}$ TAB. Ce tensioactif réduit donc l'amplitude d'oscillation du jet liquide. Cet effet a également été observé avec SDS pour la plus forte vitesse liquide ( $U_L=0,28$  m/s) seulement. Les mesures des fréquences d'instabilités de surface et de *flapping* révèlent un effet significatif sur ces instabilités uniquement avec  $C_{12}$ TAB (augmentées de l'ordre de 20 et 30% respectivement).

Il a finalement été déduit des évidences expérimentales et des données de la littérature que le paramètre principal pilotant l'effet des tensioactifs sur le jet liquide est le temps d'adsorption : le processus d'atomisation du jet liquide est impacté par le dopage si la tension superficielle est significativement réduite avant sa rupture.

Il a ensuite été montré que les changements induits par les tensioactifs sur la structure du jet liquide contribuent à modifier les tailles de gouttes dans le spray.

Différentes techniques de mesures pour la granulométrie ont été mises en place. Les distributions de tailles ont en particulier été étudiées à une distance de quatre fois la longueur de jet moyenne en eau pure ( $z=4\langle L_I \rangle_{\text{pure}}$ ). Une campagne de mesure par diffraction laser a révélé que la taille moyenne (SMD et  $D_{10}$ ) ne varie plus au delà d'une distance axiale de deux longueurs moyennes de jet. Les trois tensioactifs ont été étudiés pour des concentrations supérieures à la cmc. Les effets suivants ont été constatés sur les tailles de gouttes :

- le  $C_{16}$ TAB n'a pas d'effet sur les tailles de gouttes.
- SDS et  $C_{12}$ TAB ont des effets notables sur le spray : comparé à l'eau pure, tous deux augmentent la probabilité de présence de gouttes de faibles diamètres ( $<100 \mu m$ ), pour des vitesses d'injection gaz comprises entre 24 et 40 m/s...
- ... et présentent également la particularité de modifier le nombre de grandes tailles de gouttes ( $>1000 \mu m$ ) : le SDS réduit leur nombre pour toutes les vitesses gaz, le  $C_{12}$ TAB également pour  $U_G < 50$  m/s mais l'augmente pour des vitesses supérieures ( $U_G=50-66$  m/s). L'imagerie a confirmé ces résultats pour le  $C_{12}$ TAB, indiquant même la présence de tailles de 3000 à 4000  $\mu m$  qui n'existent pas en eau pure. Ce qui est probablement dû à des inclusions liquides très distordues, mais plus d'investigations sont nécessaires pour comprendre ce résultat.

Une forte réduction de la taille de goutte moyenne a par ailleurs été mesurée avec SDS et  $C_{12}$ TAB par rapport à l'eau pure (d'un facteur 2 à 10), dont l'écart est réduit à mesure que la vitesse gaz augmente. Ce résultat offre en outre des perspectives de contrôle des tailles de gouttes grâce au dopage.

Enfin, les mesures par sonde optique Doppler ont apporté des précisions quant à l'évo-

lution du spray en eau pure puis avec ajout de  $C_{12}TAB$  pour une concentration de 2 cmc, à une position de mesure de  $4\langle L_I \text{ pure} \rangle$  et sur l'axe de l'injecteur liquide. Il a été vu en particulier que la corde de goutte moyenne et le diamètre de Sauter sont significativement réduits par le  $C_{12}TAB$  (de l'ordre de 60%), dont la cause est une augmentation des gouttes de plus faibles cordes ( $<100 \mu m$ ) avec dopage.

Une étude approfondie de l'instrument de mesure a été réalisée au préalable dans le but d'obtenir des mesures physiquement valides. Notamment, la réalisation de profils radiaux de mesures de flux pour des conditions d'injection variées a révélé un flux liquide retrouvé par sonde optique proche du débit liquide injecté (inférieur à 20%), y compris pour des vitesses de gaz très élevées impliquant une forte densité de gouttes.

Puis les corrélations de tailles et vitesses de gouttes montrent d'une part que tailles et vitesses des inclusions semblent être légèrement corrélées (les grands diamètres sont associés aux faibles vitesses et inversement), et que le  $C_{12}TAB$  réduit la taille moyenne de goutte de façon homogène sur l'ensemble des gammes de vitesses de gouttes. Le nombre moyen de gouttes par classe de taille et vitesse de gouttes a ensuite été calculé. Les résultats ont montré un net regroupement des populations de gouttes dans l'espace  $(D, V)$  autour des valeurs moyennes avec ajout du tensioactif, ainsi qu'un décalage vers les plus faibles diamètres. Finalement, le calcul du flux de gouttes par classes de tailles indique une augmentation du flux des gouttes de diamètres inférieurs à 200-300  $\mu m$  avec dopage.

Une comparaison du temps typique de rupture des ligaments au temps d'adsorption de chaque tensioactif met en évidence que le dopage influe sur le processus de formation des ligaments, et *in fine* sur la taille des gouttes ( $2\langle D \rangle < 10 \mu m$ ) issues de la rupture de ces premiers. De plus, une corrélation est établie entre variation des grandes tailles de gouttes ( $1000\langle D \rangle < 2500 \mu m$ ) mesurée en présence de  $C_{12}TAB$  et SDS et temps de pulsation du jet lorsque le temps d'adsorption est plus court que ce dernier, mais cet effet n'est pas encore compris. Des mécanismes à l'origine des variations de tailles dans le spray avec dopage ont ainsi pu être mis en évidence, montrant que l'influence des tensioactifs sur le processus d'atomisation dépend en premier lieu du temps d'adsorption, qui doit être suffisamment court devant les instabilités conduisant à la rupture des structures liquides (de l'ordre d'un facteur 1 à 10).

Au regard des résultats obtenus dans cette étude, plusieurs perspectives quant aux travaux nécessaires à l'approfondissement de la compréhension des effets des tensioactifs sur le phénomène d'atomisation peuvent être émises.

- Il serait tout d'abord nécessaire de quantifier précisément l'effet des tensioactifs sur la formation et la rupture des ligaments, et notamment de mesurer le taux d'étirement des ligaments avec et sans dopage. De nouveau, plusieurs molécules aux propriétés variées doivent être utilisées.
- L'effet de la rhéologie propre à chaque tensioactif est toujours mal compris de par la difficulté de leurs caractérisation expérimentale, et la difficulté à transposer les études de rhéologie d'une interface excitée à amplitude et fréquence constante, à des phénomènes de forts étirements suivis de ruptures comme c'est le cas en atomisation.
- Les trois candidats utilisés présentaient une adsorption limitée par cinétique d'adsorption, il pourrait être utile de vérifier qu'un candidat dont l'adsorption est limitée plutôt par diffusion présente des effets similaires sur la structure du jet liquide et sur le spray formé.
- L'effet des tensioactifs sur la répartition spatiale (radiale notamment) des tailles et flux de gouttes n'a pas été étudié en détail. La réalisation de profils radiaux par sonde optique et à différentes distances axiales serait pour cela nécessaire.
- La variation des grandes tailles de gouttes ( $1000\langle D \rangle < 2500 \mu m$ ) observée pour les tensioactifs les plus rapides (SDS et  $C_{12}TAB$ ) reste mal comprise. Il serait notamment important de réaliser une étude des formes des gouttes par imagerie, afin de déterminer si ces variations observées par diffraction laser et imagerie, mais pas par



sonde optique, sont dues à des géométries particulières avec dopage.

- Enfin, cette étude offre une base de travail pour la réalisation de simulations numériques, qui permettraient de connaître notamment l'évolution spatio-temporelle des tensioactifs dans le jet afin de mieux comprendre leurs effets observés expérimentalement dans cette thèse.

## Annexe A

### Annexes au chapitre III

- A.1 Images complémentaires de l'écoulement
- A.2 Évolution de la longueur de brisure de jet moyenne avec les conditions d'injection, pour de l'eau pure
- A.3 Rapports de temps caractéristiques de brisure du jet liquide et d'adsorption des tensioactifs
- A.4 Fréquences de brisure du jet liquide avec tensioactifs
- A.5 Fréquences de Kelvin-Helmholtz avec tensioactifs
- A.6 Fréquences de flapping avec tensioactifs

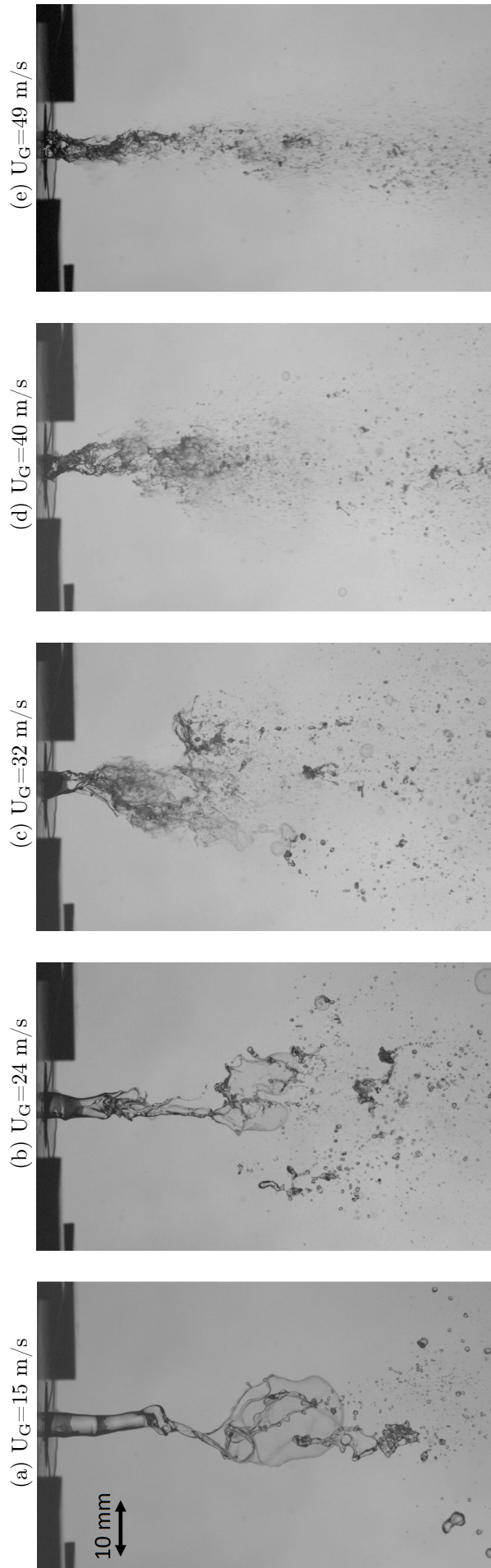


FIGURE A.1 – Visualisations instantanées de la brisure du jet liquide par l'atomiseur co-axial, pour différentes vitesses gaz et du  $C_{12}TAB$  à une concentration de 2 CMC. Vitesse liquide fixée à  $U_L=0,28$  m/s.

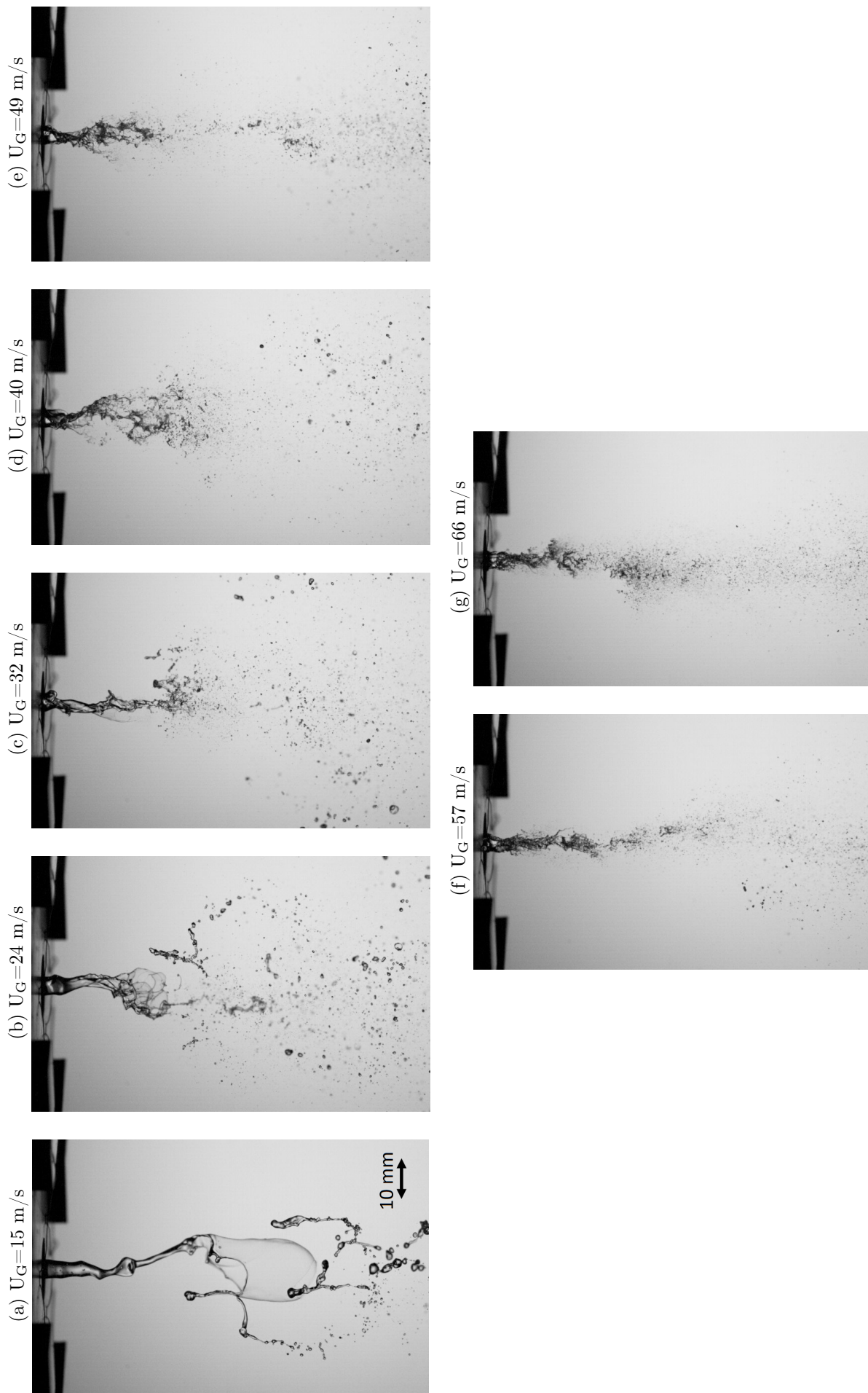


FIGURE A.2 – Visualisations instantanées de la brisure du jet liquide par l'atomiseur co-axial, pour différentes vitesses gaz et du SDS à une concentration de 1 CMC. Vitesse liquide fixée à  $U_L=0,28$  m/s.

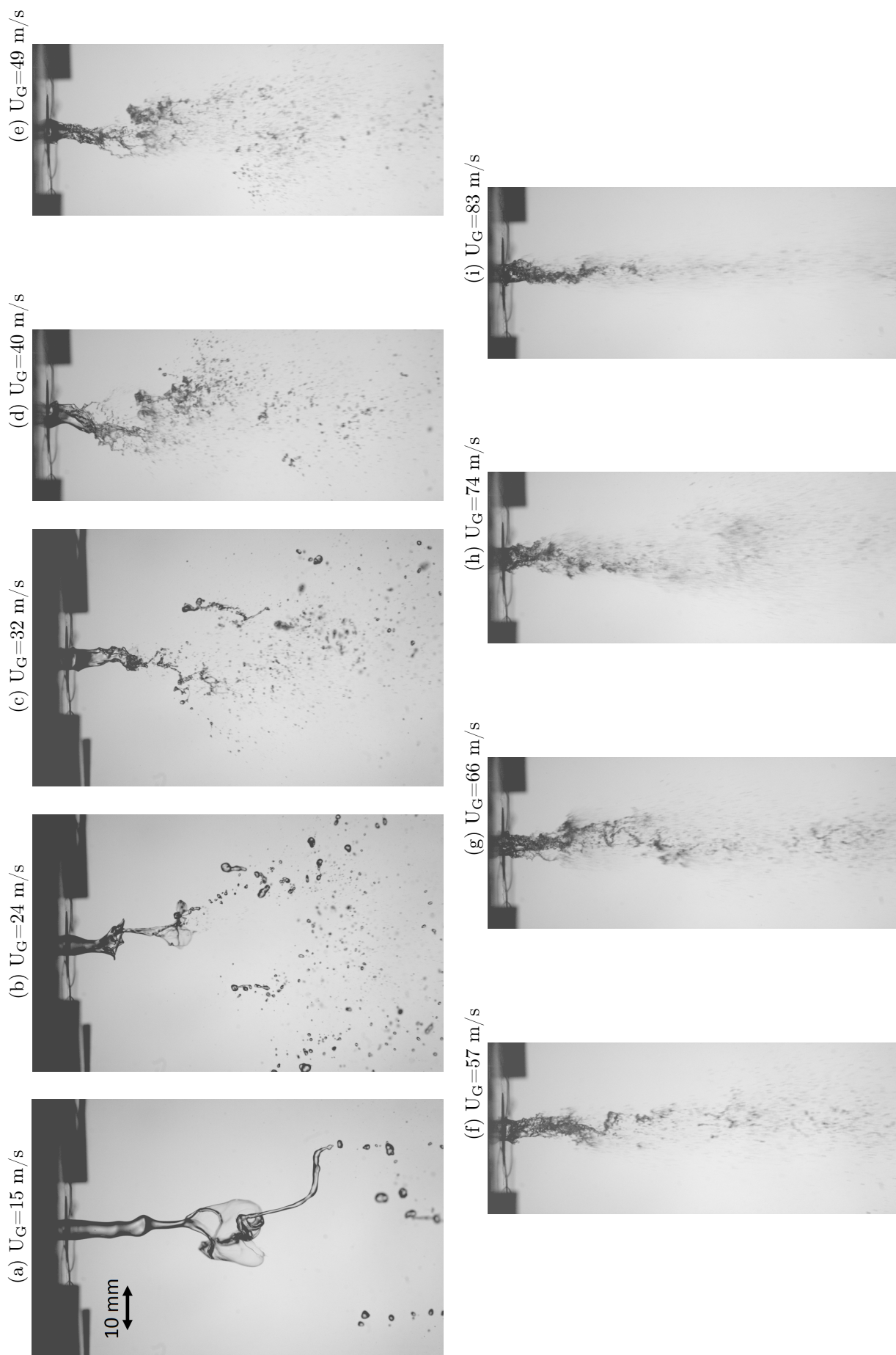


FIGURE A.3 – Visualisations instantanées de la brisure du jet liquide par l'atmiseur co-axial, pour différentes vitesses gaz et du  $C_{16}TAB$  à une concentration de 2 CMC. Vitesse liquide fixée à  $U_L=0,28$  m/s.

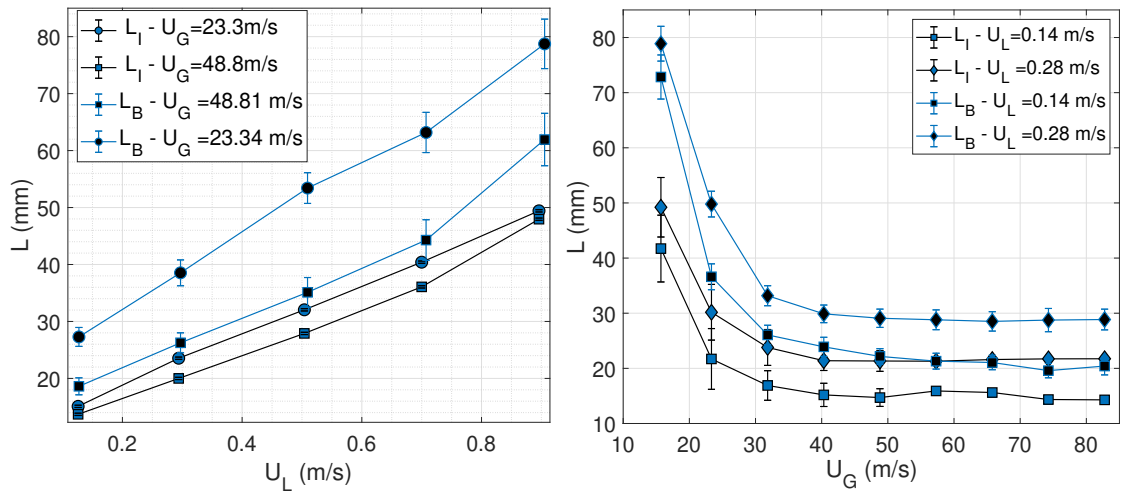


FIGURE A.4 – Évolution de la longueur de brisure moyenne ( $L_B$ ) avec les vitesses liquide (gauche) et gaz (droite), pour de l'eau pure. Comparaison avec les mesures de la longueur de jet moyenne ( $L_I$ ). Les barres verticales représentent l'écart-type sur la grandeur mesurée.

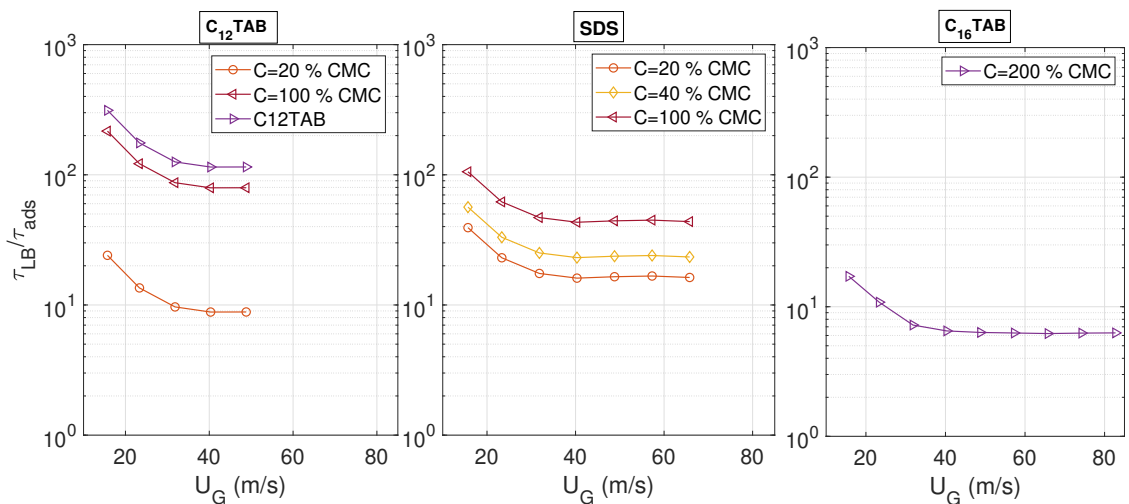


FIGURE A.5 – Rapport du temps de brisure du jet liquide et d'adsorption du tensioactif en fonction de la vitesse gaz, pour les trois candidats utilisés. Vitesse liquide  $U_L=0,28$  m/s.

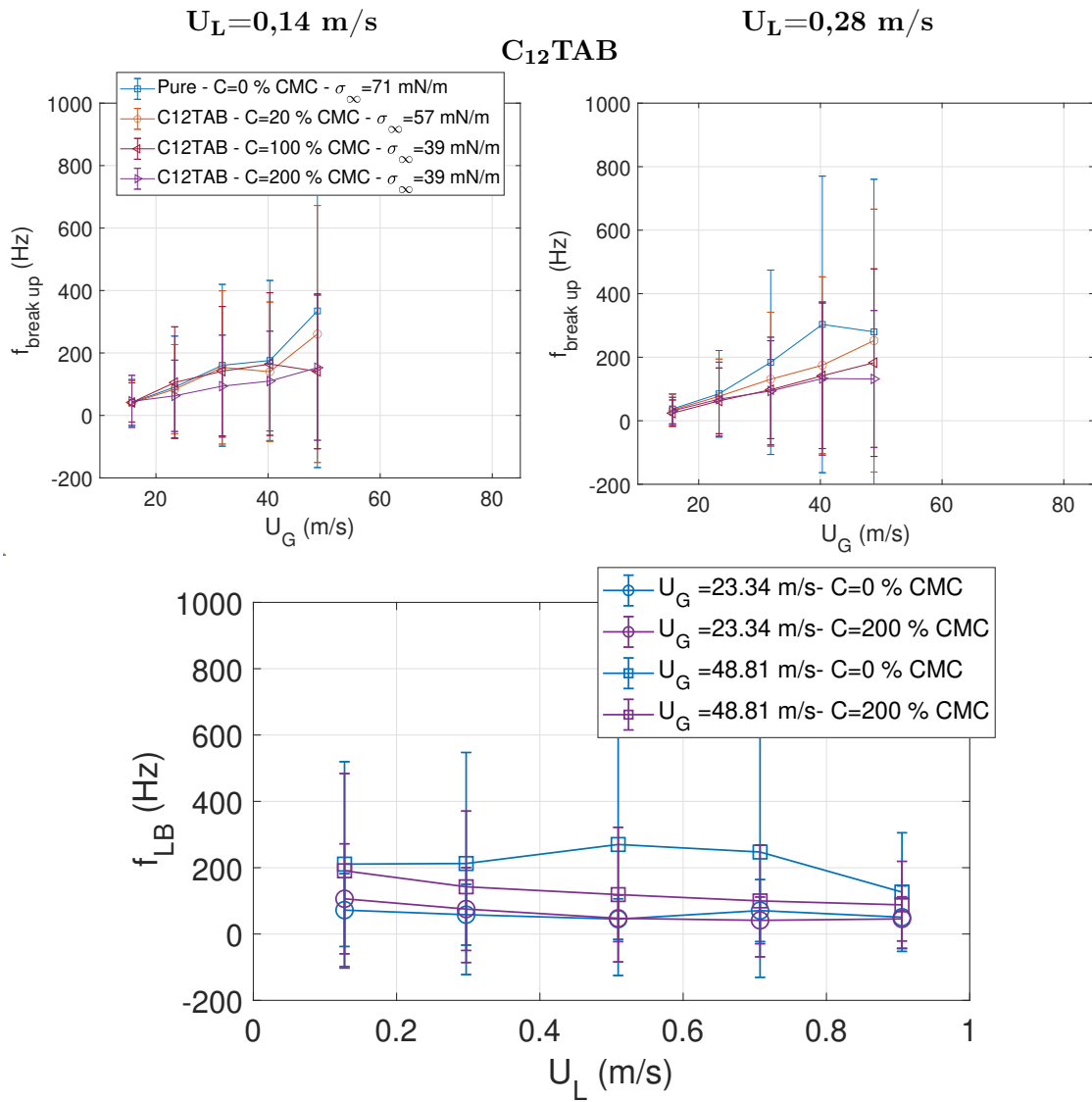


FIGURE A.6 – Évolution de la fréquence de brisure du jet liquide en fonction de la vitesse gaz (gauche :  $U_L = 0,14 \text{ m/s}$ , droite :  $U_L = 0,28 \text{ m/s}$ ), et de la vitesse liquide (bas). Les barres d'erreur correspondent à l'écart-type.

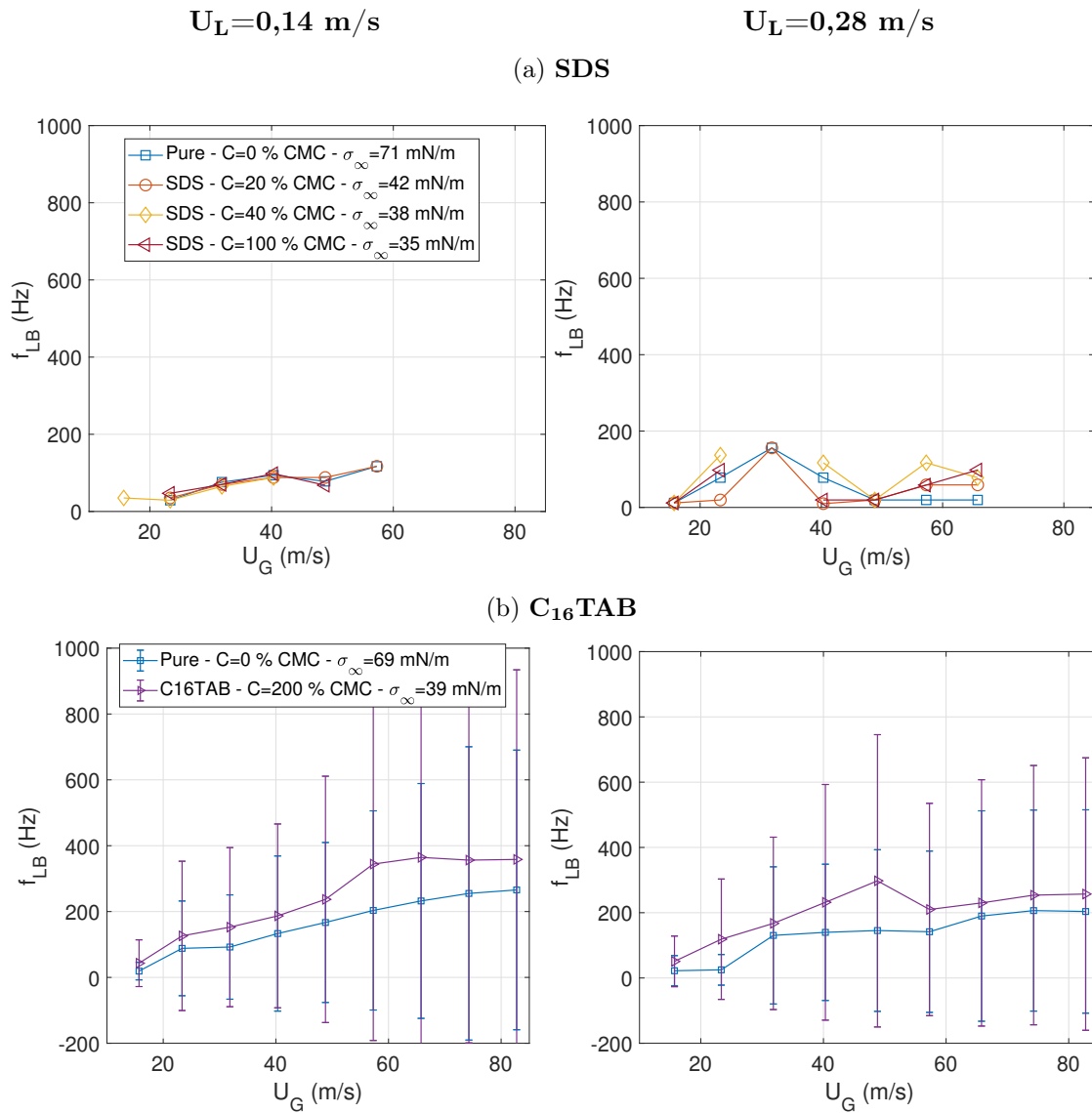


FIGURE A.7 – Évolution de la fréquence dominante de brisure du jet liquide en fonction de la vitesse gaz (gauche :  $U_L=0,14$  m/s, droite :  $U_L=0,28$  m/s), pour les mesures avec SDS a) et C<sub>16</sub>TAB (a). Les barres d'erreur correspondent à l'écart-type.



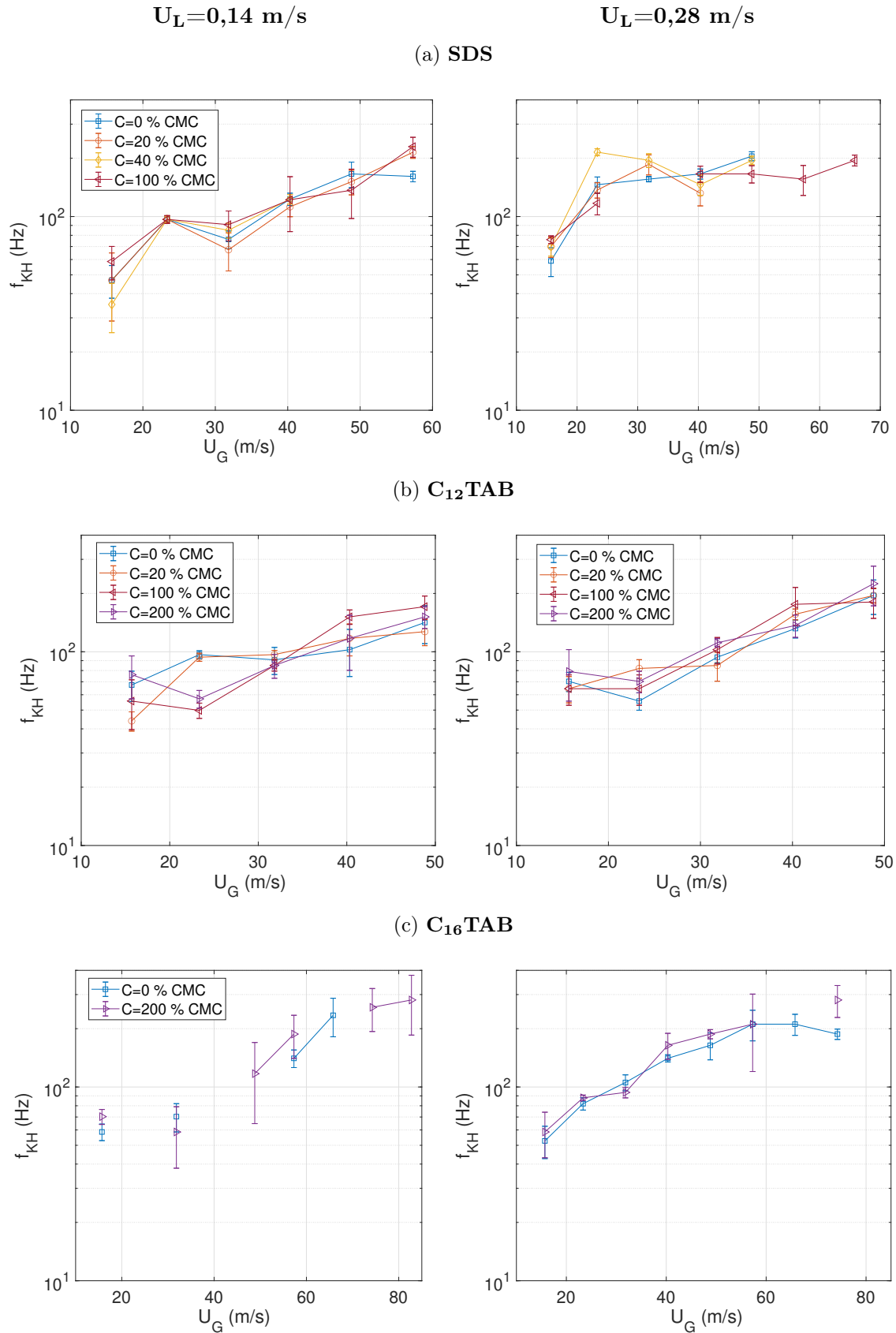


FIGURE A.8 – Évolution de la fréquence dominante de l'instabilité de Kelvin-Helmholtz en fonction de la vitesse gaz (gauche :  $U_L=0,14 \text{ m/s}$ , droite :  $U_L=0,28 \text{ m/s}$ ), pour les mesures avec SDS (a),  $C_{12}TAB$  (b) et  $C_{16}TAB$  (c). Les barres d'erreur correspondent à la largeur à mi-hauteur du pic dominant du spectre de la fft.

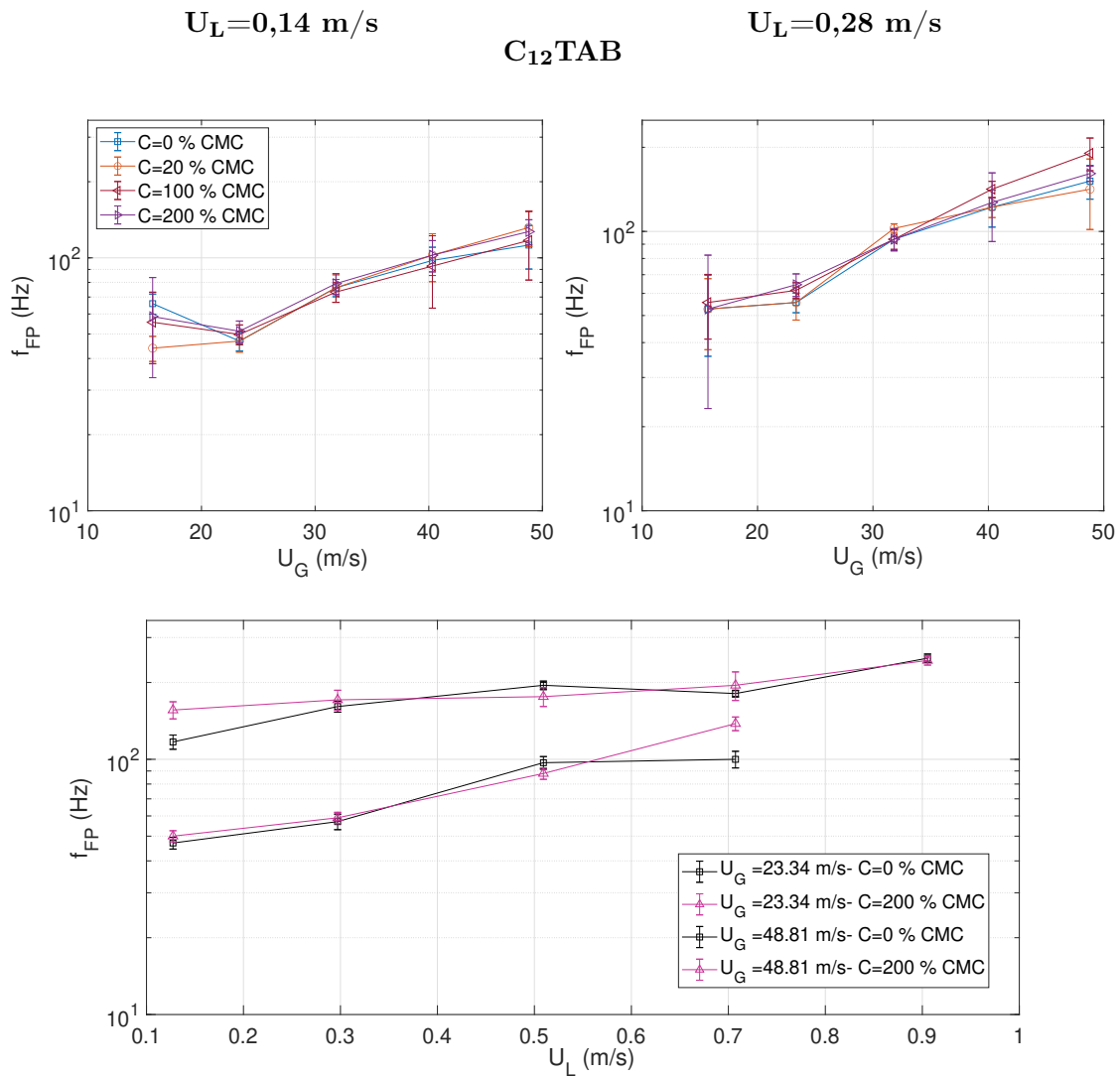


FIGURE A.9 – Évolution de la fréquence dominante de *flapping* du jet liquide en fonction de la vitesse gaz (gauche :  $U_L=0,14 \text{ m/s}$ , droite :  $U_L=0,28 \text{ m/s}$ ), et de la vitesse liquide (bas). Les barres d'erreur correspondent à la largeur à mi-hauteur du pic dominant du spectre de la fft.

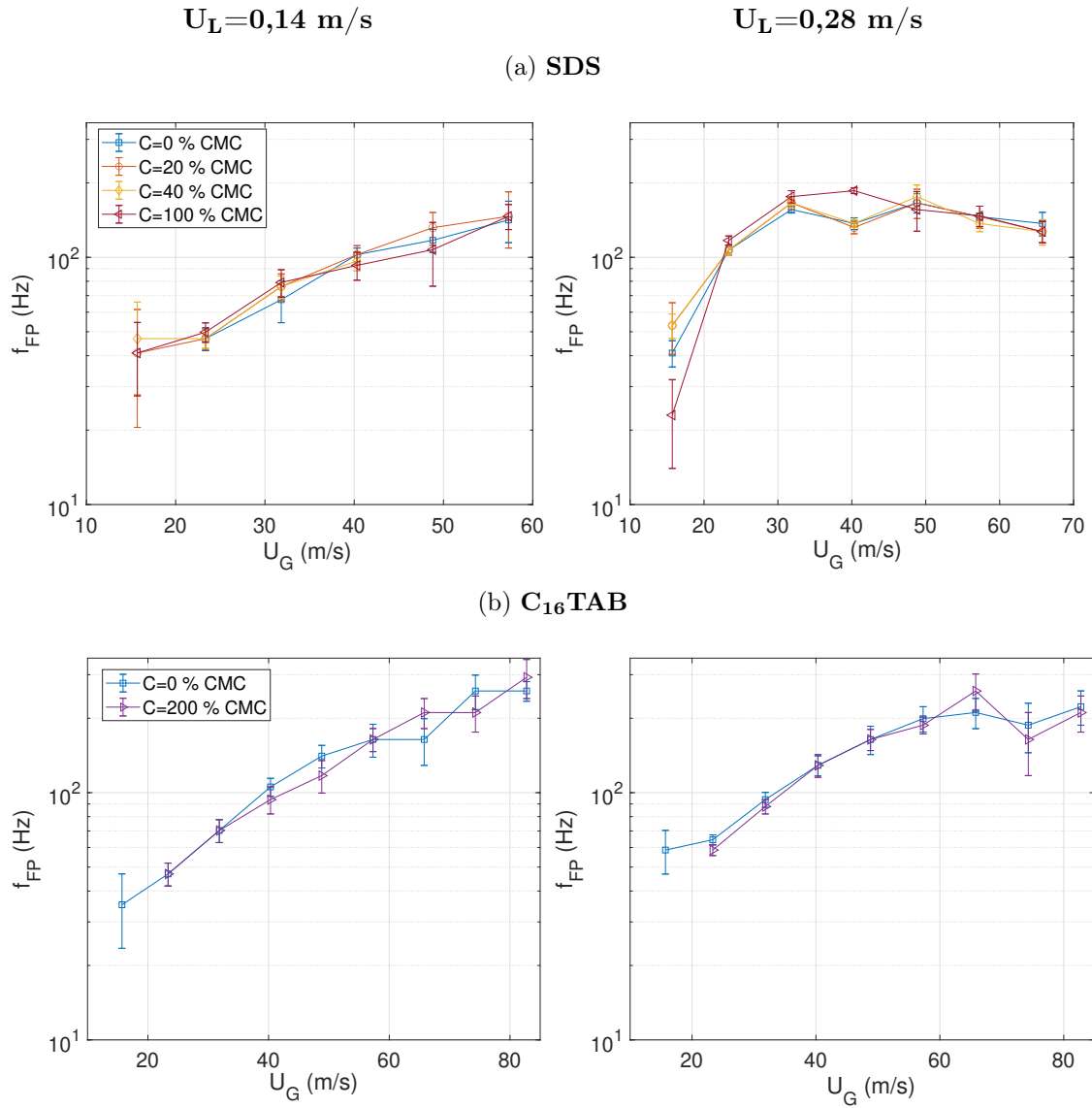


FIGURE A.10 – Évolution de la fréquence dominante de *flapping* du jet liquide en fonction de la vitesse gaz (gauche :  $U_L=0,14 \text{ m/s}$ , droite :  $U_L=0,28 \text{ m/s}$ ), pour les mesures avec SDS (a) et C<sub>16</sub>TAB (b). Les barres d'erreur correspondent à l'incertitude de la mesure, évaluée comme la largeur à mi-hauteur du pic dominant du spectre de la fft.

## Annexe B

### Annexes au chapitre V

#### B.1 Diamètre de Sauter volumique des particules obtenu par diffraction laser avec de l'eau pure

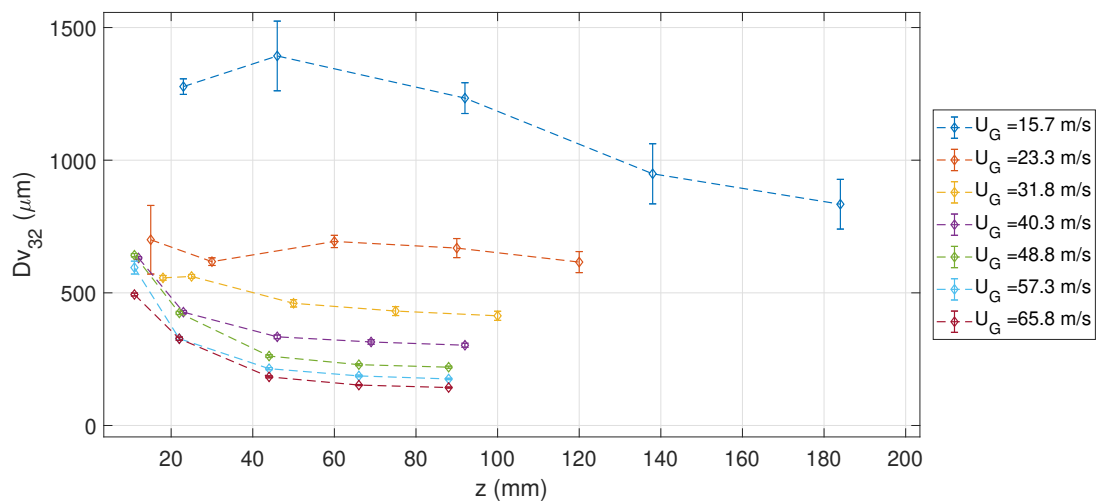


FIGURE B.1 – Diamètre de Sauter en fonction de la vitesse gaz et de la distance axiale absolue. Mesures par diffraction laser. Eau pure et  $U_L=0,28$  m/s.

#### B.2 Diamètre arithmétique moyen des particules obtenu par diffraction laser

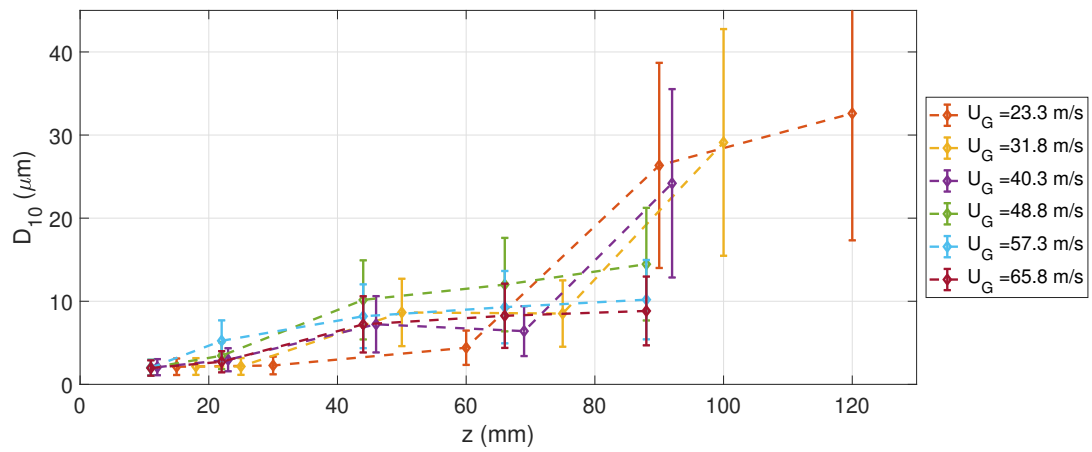
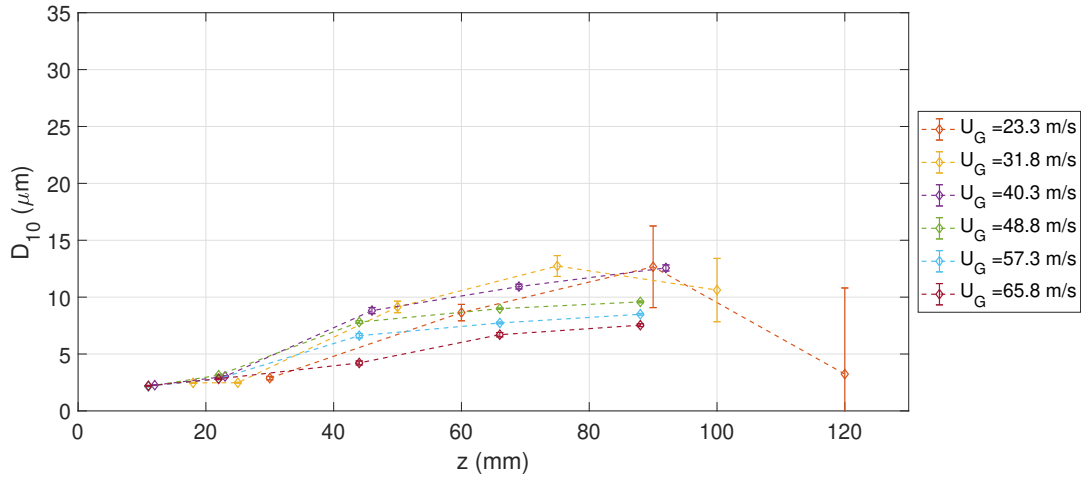
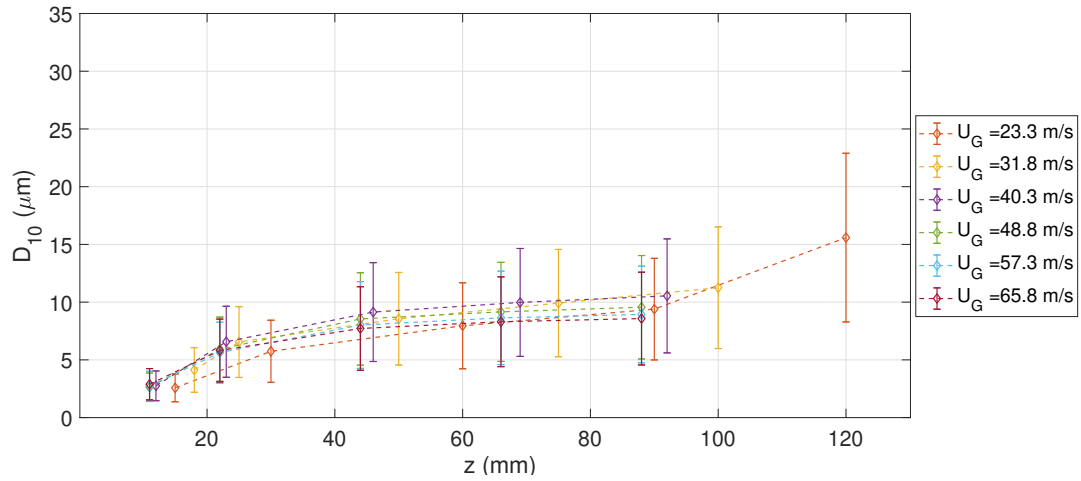


FIGURE B.2 – Évolution du diamètre arithmétique moyen en fonction de la distance axiale de mesure et de la vitesse gaz. Eau pure, vitesse liquide fixée à  $U_L=0,28$  m/s. Mesures par diffraction laser.

(a) SDS 1 cmc



(b) C<sub>12</sub>TAB 2 cmc



(c) C<sub>16</sub>TAB 2 cmc

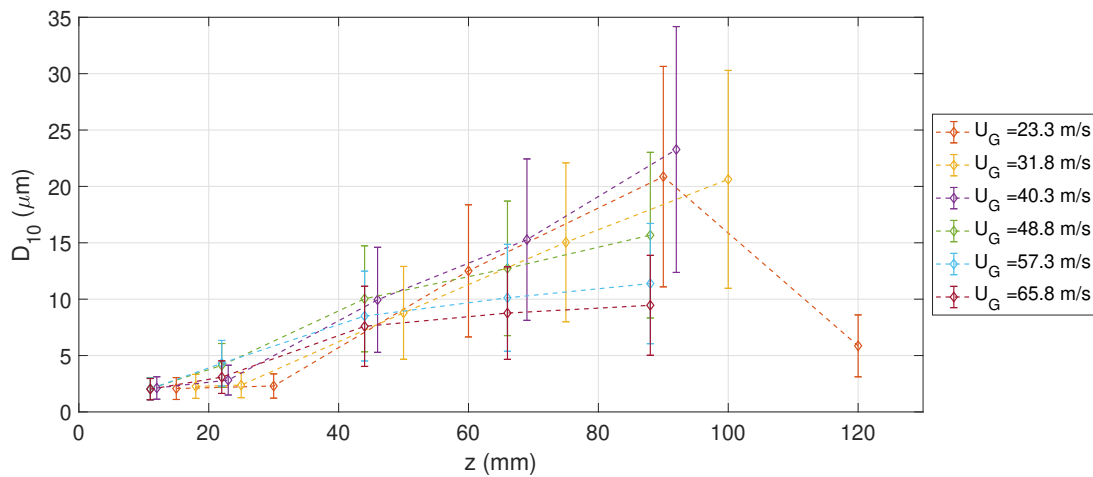


FIGURE B.3 – Évolution du diamètre arithmétique moyen pour chaque tensioactif, en fonction de la distance axiale de mesure et de la vitesse gaz. Mesures par diffraction laser. (a) SDS  $c=1$  cmc, (b) C<sub>12</sub>TAB 2 cmc, (c) C<sub>16</sub>TAB 2 cmc. Vitesse liquide fixée à  $U_L=0,28$  m/s.

### B.3 Transition d'une distribution de cordes de gouttes à une distribution de tailles

L'obtention d'une distribution de tailles de particules (gouttes ou bulles) par sonde optique nécessite de convertir la distribution de cordes retournée par l'instrument en diamètres. En effet, la mesure est ponctuelle, et la sonde intercepte les particules non pas en leurs centres mais avec une excentricité  $r$  (tant que  $r < R$ ,  $R$  le rayon de la particule) comme illustré en Figure B.4. La distribution de tailles est obtenue par inversion de la distribution de cordes, et cette annexe fournit les détails de calcul permettant d'arriver à la formule d'inversion sous condition d'un certain nombre d'hypothèses relatives à l'écoulement diphasique. Nous nous basons sur les travaux de Clark & Turton [17] et Cartellier [10].

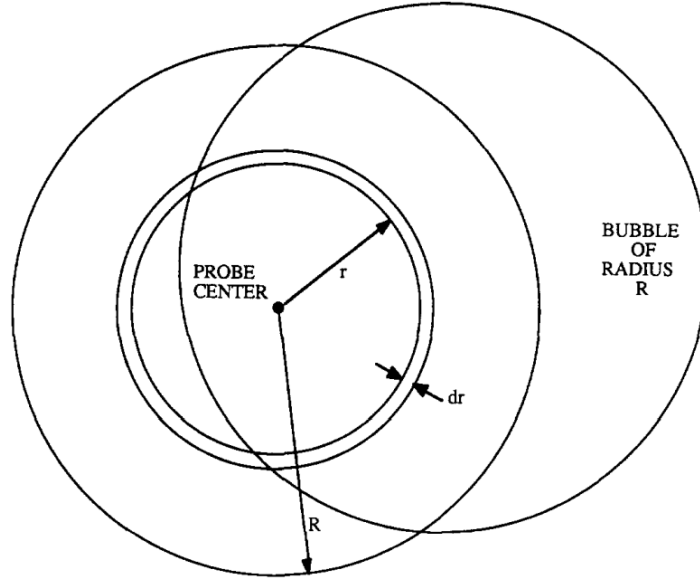


FIGURE B.4 – Vue d'une particule de rayon  $R$  interceptée par la sonde optique avec une excentricité  $r$ , d'après Clark & Turton [17].

Soit une particule de forme ellipsoïdale dans le plan  $(\mathbf{e}_r, \mathbf{e}_z)$ , de grand axe  $2R$  et d'axe mineur  $2\alpha R$  (Figure B.5a), et cylindrique de rayon  $R$  dans le plan  $(\mathbf{e}_r, \mathbf{e}_\theta)$  (Figure B.5b). Sa trajectoire est colinéaire à l'axe de la sonde (selon l'axe  $\mathbf{e}_z$ ). L'on définit la fonction densité de probabilité  $P_c(y|R)$  qu'une particule de grand axe  $R$  soit percée par la sonde selon une corde  $y$ . Cette probabilité peut s'exprimer géométriquement comme le rapport de la surface vue par la sonde et de la surface totale de la particule orthogonale à l'axe de la sonde (Figure B.5b) :

$$P_c(y|R)dy = \frac{S_2}{S_1} = \frac{2\pi r dr}{\pi R^2} = \frac{2r}{R^2} dr \quad (\text{B.1})$$

La propriété d'une ellipse permet de lier l'excentricité  $r$ , la corde  $y$  et les axes mineur et majeur de l'ellipse par la relation :

$$\frac{r^2}{R^2} + \frac{(y/2)^2}{(\alpha R)^2} = 1 \quad (\text{B.2})$$

i.e.

$$y = 2\alpha R \sqrt{R^2 - r^2} \quad (\text{B.3})$$

L'on a donc en injectant l'équation B.3 dans B.1 :

$$P_c(y|R) = \frac{2r}{R^2} \left| \frac{dr}{dy} \right| = \frac{2r}{R^2} \frac{y}{4\alpha^2 r} = \frac{y}{2\alpha^2 R^2} \quad (\text{B.4})$$

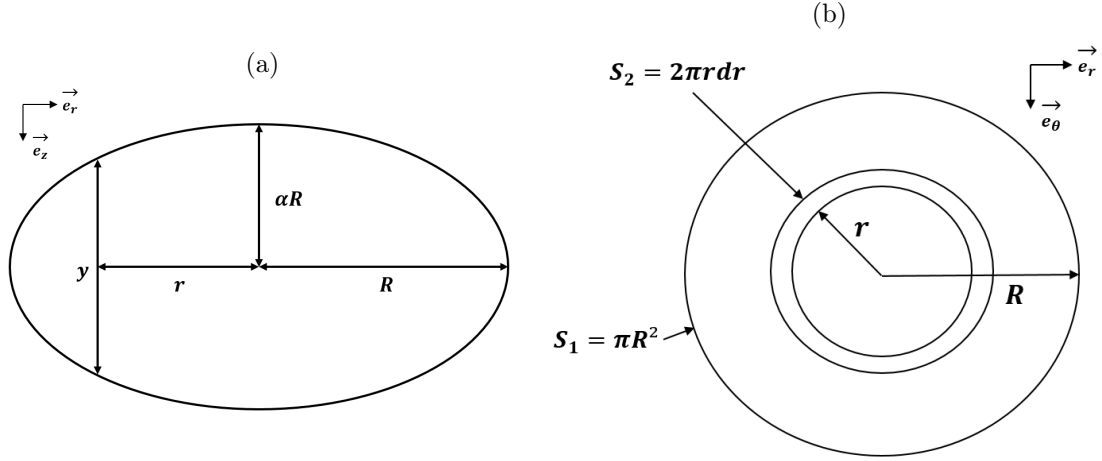


FIGURE B.5 – (a) Particule elliptique de grand axe  $R$  et axe mineur  $\alpha R$ , interceptée par la sonde optique avec une excentricité  $r$ , donnant une corde  $y$ . (b) Surfaces de la particule ( $S_1$ ), et vue par la sonde ( $S_2$ ).

avec  $0 \leq y \leq 2\alpha R$ .

$P_c(y|R)$  est la probabilité qu'une goutte de rayon fixe  $R$  touche la sonde selon une corde  $y$ . La probabilité d'avoir une corde  $y$  pour toute les taille  $R$  s'exprime alors :

$$P_c(y) = \int_0^{R_{\max}} P_c(y|R)P(R)dR \quad (\text{B.5})$$

Où  $P(R)$  est la distribution de tailles des particules touchées par la sonde, de rayons allant de 0 à  $R_{\max}$ . En utilisant l'équation B.4, l'on obtient :

$$P_c(y) = \int_0^{\frac{y_{\max}}{2\alpha}} \frac{y}{2\alpha^2 R^2} P(R)dR \quad (\text{B.6})$$

L'on peut alors discrétiser les distributions de cordes et de tailles comme suit :

$$\begin{aligned} R_j &= R_{\max}(1 - j/n) \quad 0 \leq j \leq n \\ y_i &= y_{\max}(1 - i/n) \quad 0 \leq i \leq n \end{aligned} \quad (\text{B.7})$$

Avec les conditions limites :

$$\begin{aligned} R_0 &= R_{\max} \\ R_n &= 0 \implies P(R_n) = 0 \\ y_0 &= y_{\max} \\ y_n &= 0 \implies P_c(y_n) = 0 \end{aligned}$$

Étant donné que l'instrument retourne une distribution de cordes, la densité de probabilité  $P_c(y)$  peut être distribuée par classes :

$$\begin{aligned} W_i &= \int_{y_{i+1}}^{y_i} P_c(y)dy \\ &= \int_{y_{i+1}}^{y_i} \left[ \sum_{j=1}^{n-1} \int_{R_{j+1}}^{R_j} P_c(y|R)P(R)dR \right] dy \end{aligned} \quad (\text{B.8})$$

$y$  est le centre de l'intervalle  $[y_{i+1} ; y_i]$ . Par intégration discrète via la méthode des trapèzes, B.8 devient :

$$W_i = \frac{\Delta R}{2} \int_{y_{i+1}}^{y_i} \sum_{j=1}^{n-1} [P_c(y|R_j)P(R_j) + P_c(y|R_{j+1})P(R_{j+1})] dy$$



Après développement, l'on obtient :

$$W_i = \Delta R \sum_{j=0}^{n-1} C_{ij} P(R_j) \quad (\text{B.9})$$

avec :

$$\begin{cases} C_{00} = \frac{1}{2} \int_{y_{i+1}}^{y_i} P(y|R_0) dy \\ C_{ij} = \int_{y_{i+1}}^{y_i} P(y|R_j) dy \quad \text{si } j \leq i \\ C_{ij} = 0 \quad \text{si } j > i \end{cases} \quad (\text{B.10})$$

En effet dans le cas où  $j > i$ , la corde  $y_i$  est supérieure à l'axe mineur  $2\alpha R_j$  ce qui n'est pas possible. Et le terme  $C_{ij}$  se discrétise d'après l'équation B.4 :

$$C_{ij} = \int_{y_{i+1}}^{y_i} P(y|R_j) dy = \frac{y_i^2 - y_{i+1}^2}{4\alpha^2 R_j^2} \quad (\text{B.11})$$

$C_{ij}$  est une matrice de taille  $n \times n$ ,  $W_i$  et  $P(R_j)$  des vecteurs de tailles  $n$ . L'on a donc sous forme matricielle :

$$\overline{W} = \Delta R \overline{C} \cdot \overline{P(R)} \quad (\text{B.12})$$

D'où peut être déduite la distribution de tailles :

$$\overline{P(R)} = (1/\Delta R) \overline{C}^{-1} \cdot \overline{W} \quad (\text{B.13})$$

## B.4 Comparaisons des distributions de vitesses et cordes de gouttes avec et sans interpolation (chapitre V)

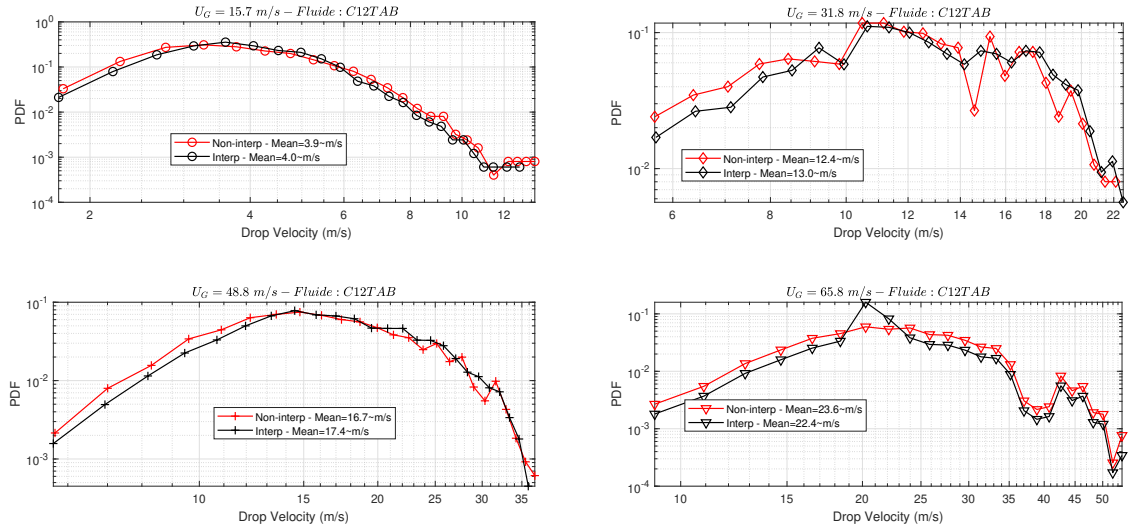


FIGURE B.6 – Distributions des vitesses de gouttes pour différentes vitesses gaz. Distances de mesures :  $z=4 \cdot \langle L_B \rangle$ . C<sub>12</sub>TAB,  $c=2 \cdot \text{cmc}$ ,  $U_L=0,28 \text{ m/s}$ .

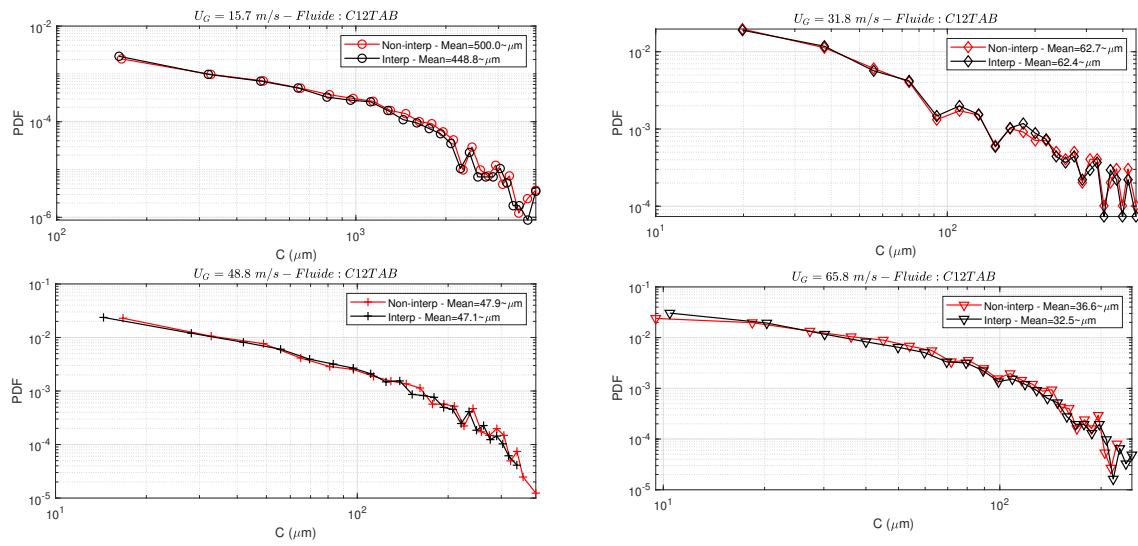


FIGURE B.7 – Distributions de cordes de gouttes pour différentes vitesses gaz. Distances de mesures :  $z=4 \cdot \langle L_B \rangle$ .  $C_{12TAB}$ ,  $c=2 \cdot c_{mc}$ ,  $U_L=0,28 \text{ m/s}$ .

# Bibliographie

- [1] ADAMSON, A.W., & A.P., GAST. 1997. *Physical Chemistry of Surfaces, 6th Edition*.
- [2] AL-SABAGH, A. M., AZZAM, E. M. S., NASSER, N. M., & EL-SHAFFEY, A. M. 2009. Investigation Static/Dynamic Surface and Interfacial Tension of Some Synthesized Polymeric Surfactants to Enhance the Egyptian Jet Fuel A1 Atomization. *Journal of Dispersion Science and Technology*, **30**(4), 520–528.
- [3] ARAI, H. 1985. M., Shimizu, M., & Hiroyasu, “Break-up length and spray angle of high speed jet,”. In : *International Conference on Liquid Atomisation and Spray Systems*.
- [4] ARIS, RUTHERFORD. 1962. Vectors, Tensors and the Basic Equations of Fluid Mechanics. *Englewood Cliffs*.
- [5] BAILLOT, F, BLAISOT, J-B, BOISDRON, G, & DUMOUCHEL, CHRISTOPHE. 2009. Behaviour of an air-assisted jet submitted to a transverse high-frequency acoustic field. *Journal of Fluid Mechanics*, **640**, 305–342.
- [6] BATTAL, TURGUT, SHEARMAN, GEMMA C, VALKOVSKA, DIMITRINA, BAIN, COLIN D, DARTON, RICHARD C, & EASTOE, JULIAN. 2003. Determination of the dynamic surface excess of a homologous series of cationic surfactants by ellipsometry. *Langmuir*, **19**(4), 1244–1248.
- [7] BEN RAYANA, FARES. 2007. *Contribution à l'étude des instabilités interfaciales liquide-gaz en atomisation assistée et taille de gouttes*. Ph.D. thesis, Grenoble INPG.
- [8] BERGERON, VANCE. 1997. Disjoining pressures and film stability of alkyltrimethylammonium bromide foam films. *Langmuir*, **13**(13), 3474–3482.
- [9] BUSSONNIÈRE, ADRIEN, & CANTAT, ISABELLE. 2021. Local origin of the viscoelasticity of a millimetric elementary foam. *Journal of Fluid Mechanics*, **922**.
- [10] CARTELLIER, A. 1999. Post-treatment for phase detection probes in non uniform two-phase flows. *International journal of multiphase flow*, **25**(2), 201–228.
- [11] CARTELLIER, A, & BARRAU, E. 1998. Monofiber optical probes for gas detection and gas velocity measurements : conical probes. *International journal of multiphase flow*, **24**(8), 1265–1294.
- [12] CARTELLIER, ALAIN. 1998. Measurement of gas phase characteristics using new monofiber optical probes and real-time signal processing. *Nuclear Engineering and Design*, **184**(2-3), 393–408.
- [13] CHANDRASEKHAR, S. 1961. *Hydrodynamic and hydromagnetic stability, ser.*
- [14] CHARALAMPOUS, GEORGIOS, HARDALUPAS, YANNIS, & TAYLOR, ALEX. 2009. Structure of the continuous liquid jet core during coaxial air-blast atomisation. *International journal of spray and combustion dynamics*, **1**(4), 389–415.

- [15] CHARALAMPOUS, GEORGIOS, HADJIYIANNIS, CONSTANTINOS, & HARDALUPAS, YANNIS. 2016. Comparative measurement of the breakup length of liquid jets in airblast atomisers using optical connectivity, electrical connectivity and shadowgraphy. *Measurement*, **89**, 288–299.
- [16] CHIGIER, NORMAN, & FARAGO, ZOLTAN. 1992. Morphological classification of disintegration of round liquid jets in a coaxial air stream. *Atomization and Sprays*, **2**(2).
- [17] CLARK, NIGEL N, & TURTON, R. 1988. Chord length distributions related to bubble size distributions in multiphase flows. *International Journal of Multiphase Flow*, **14**(4), 413–424.
- [18] CORNILLAULT, J. 1972. Particle size analyzer. *Applied optics*, **11**(2), 265–268.
- [19] CRASTER, RV, MATAR, OK, & PAPAGEORGIOU, DT. 2002. Pinchoff and satellite formation in surfactant covered viscous threads. *Physics of Fluids*, **14**(4), 1364–1376.
- [20] DANOV, KRASSIMIR D, KRALCHEVSKY, PETER A, DENKOV, NIKOLAI D, ANANTHAPADMANABHAN, KAVSSERY P, & LIPS, ALEX. Dynamics of Adsorption from Micellar Surfactant Solutions at Expanding Fluid Interfaces in Relation to the Emulsification Process.
- [21] DAVIES, JT, & MAKEPEACE, RW. 1978. Measurement of the surface ages of water jets. *AIChE Journal*, **24**(3), 524–530.
- [22] DELON, ANTOINE. 2016. *Instabilité de flapping : origine et effets sur la structure et le spray d'un jet atomisé*. Ph.D. thesis. These de doctorat dirigée par Cartellier, Alain et Matas, Jean-Philippe Mécanique des fluides Grenoble Alpes 2016.
- [23] DELON, ANTOINE, CARTELLIER, ALAIN, & MATAS, JEAN-PHILIPPE. 2018. Flapping instability of a liquid jet. *Phys. Rev. Fluids*, **3**(Apr), 043901.
- [24] DIMOTAKIS, PAUL E. 1986. Two-dimensional shear-layer entrainment. *AIAA journal*, **24**(11), 1791–1796.
- [25] DRAVID, VINEET, SONGSERMPONG, SIRICHAJ, XUE, ZHENGJUN, CORVALAN, CARLOS M., & SOJKA, PAUL E. 2006. Two-dimensional modeling of the effects of insoluble surfactant on the breakup of a liquid filament. *Chemical Engineering Science*, **61**(11), 3577 – 3585.
- [26] DUKHIN, STANISLAW S., KRETZSCHMAR, GÜNTER, & MILLER, REINHARD (eds). 1995. Chapter 5 Experimental technique to study adsorption kinetics. *Pages 140 – 201 of : DUKHIN, STANISLAW S., KRETZSCHMAR, GÜNTER, & MILLER, REINHARD (eds), Dynamics of Adsorption at Liquid Interfaces*. Studies in Interface Science, vol. 1. Elsevier.
- [27] EASTOE, J, & DALTON, J.S. 2000. Dynamic surface tension and adsorption mechanisms of surfactants at the air-water interface. *Advances in Colloid and Interface Science*, **85**(2), 103 – 144.
- [28] ELLIS, MC BUTLER, TUCK, CR, & MILLER, PCH. 2001. How surface tension of surfactant solutions influences the characteristics of sprays produced by hydraulic nozzles used for pesticide application. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, **180**(3), 267–276.
- [29] EROGLU, HASAN, CHIGIER, NORMAN, & FARAGO, ZOLTAN. 1991. Coaxial atomizer liquid intact lengths. *Physics of Fluids A : Fluid Dynamics*, **3**(2), 303–308.

- [30] FRUHNER, H, WANTKE, K.-D, & LUNKENHEIMER, K. 2000. Relationship between surface dilational properties and foam stability. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, **162**(1), 193 – 202.
- [31] GUILLARD, JEAN-CHRISTOPHE. 2016. *Étude expérimentale de l'atomisation assistée de jets diphasiques gaz-liquide*. Ph.D. thesis. Thèse de doctorat dirigée par Cartellier, Alain et Matas, Jean-Philippe Mécanique des fluides, procédés, énergétique Grenoble Alpes 2016.
- [32] GUILLARD, JEAN-CHRISTOPHE, MATAS, JEAN-PHILIPPE, & CARTELLIER, ALAIN H. 2014. Assisted atomization of a gas-liquid jet : effect of the volumic gas fraction in the inner jet on the spray characteristics. In : *52nd European Two-Phase Flow Group Meeting (ETPFGM2014)*.
- [33] HE, YUNFEI, YAZHGUR, PAVEL, SALONEN, ANNIINA, & LANGEVIN, DOMINIQUE. 2015. Adsorption desorption kinetics of surfactants at liquid surfaces. *Advances in Colloid and Interface Science*, **222**, 377 – 384. Reinhard Miller, Honorary Issue.
- [34] HONG, M, CARTELLIER, A, & HOPFINGER, EJ. 2002. Atomization and mixing in coaxial injection. *Pages 3–6 of : Proc. 4th Int. Conference on Launcher Technology" Space Launcher Liquid Propulsion", Liege, Belgique*.
- [35] HONG, MOONGEUN. 2003. *Atomisation et mélange dans les jets coaxiaux liquide-gaz*. Ph.D. thesis. Thèse de doctorat dirigée par Hopfinger, Emil Mécanique des fluides et transferts Grenoble INPG 2003.
- [36] HONG, MOONGEUN, CARTELLIER, ALAIN, & HOPFINGER, EMIL J. 2004. Characterization of phase detection optical probes for the measurement of the dispersed phase parameters in sprays. *International Journal of Multiphase Flow*, **30**(6), 615 – 648.
- [37] HSIANG, L-P, & FAETH, GM. 1995. Drop deformation and breakup due to shock wave and steady disturbances. *International Journal of Multiphase Flow*, **21**(4), 545–560.
- [38] HUA, XI YUAN, & ROSEN, MILTON J. 1988. Dynamic surface tension of aqueous surfactant solutions : I. Basic parameters. *Journal of Colloid and Interface Science*, **124**(2), 652 – 659.
- [39] HUTIN, ANTHONY. 2019 (12). *6. Rhéologie interfaciale : compression et dilatation*.
- [40] JEROME, J JOHN SOUNDAR, MARTY, SYLVAIN, MATAS, JEAN-PHILIPPE, ZALESKI, STÉPHANE, & HOEPFFNER, JÉRÔME. 2013. Vortices catapult droplets in atomization. *Physics of Fluids*, **25**(11), 112109.
- [41] JOBERT, PP, & LEBLOND, J. 1979. Effects of surface active materials on the hydrodynamic development in a liquid jet. *Journal of Colloid and Interface Science*, **68**(3), 478–485.
- [42] KLOUBEK, J. 1972. Measurement of the dynamic surface tension by the maximum bubble pressure method. II. Calculation of the effective age of the solution-air interface. *Journal of Colloid and Interface Science*, **41**(1), 1–6.
- [43] KOLEV, VL, DANOV, KD, KRALCHEVSKY, PA, BROZE, G, & MEHRETEAB, A. 2002. Comparison of the van der Waals and Frumkin adsorption isotherms for sodium dodecyl sulfate at various salt concentrations. *Langmuir*, **18**(23), 9106–9109.
- [44] KOUIJ, STEFAN, SIJS, RICK, DENN, MORTON M., VILLERMAUX, EMMANUEL, & BONN, DANIEL. 2018. What Determines the Drop Size in Sprays? *Phys. Rev. X*, **8**(Jul), 031019.

- [45] KULKARNI, ANIKET P, MEGARITIS, THANOS, & GANIPPA, LIONEL CHRISTOPHER. 2020. Insights on the morphology of air-assisted breakup of urea-water-solution sprays for varying surface tension. *International Journal of Multiphase Flow*, **133**, 103448.
- [46] KUMAR, ABHIJEET, & SAHU, SRIKRISHNA. 2018. Liquid jet breakup unsteadiness in a coaxial air-blast atomizer. *International journal of spray and combustion dynamics*, **10**(3), 211–230.
- [47] LASHERAS, JC, VILLERMAUX, E, & HOPFINGER, EJ. 1998. Break-up and atomization of a round water jet by a high-speed annular air jet. *Journal of Fluid Mechanics*, **357**, 351–379.
- [48] LASHERAS, JUAN C, & HOPFINGER, EJ. 2000. Liquid jet instability and atomization in a coaxial gas stream. *Annual review of fluid mechanics*, **32**(1), 275–308.
- [49] LEFEBVRE, ANTHONY, GLUCK, STÉPHANE, MEZUI, YANN, OBLIGADO, MARTIN, & CARTELLIER, ALAIN H. 2019. A new optical sensor for bubble velocity and size measurements in heterogeneous bubbly flows. *In : The 12th European Congress Of Chemical lEngineering*.
- [50] LEFEBVRE, ANTHONY, MEZUI, YANN, OBLIGADO, MARTIN, GLUCK, STÉPHANE, & CARTELLIER, ALAIN. 2021. A new, optimized Doppler optical probe for phase detection, bubble velocity and size measurements : investigation of a bubble column operated in the heterogeneous regime. *Chemical Engineering Science*, 117359.
- [51] LEFEBVRE, ARTHUR H, & MCDONELL, VINCENT G. 2017. *Atomization and sprays*. CRC press.
- [52] LEROUX, BERTRAND, DELABROY, OLIVIER, & LACAS, FRANCOIS. 2007. Experimental study of coaxial atomizers scaling. Part I : dense core zone. *Atomization and Sprays*, **17**(5).
- [53] LI, BUQIANG, GEERAERTS, G, & JOOS, P. 1994. Kinetic equations for transfer-controlled adsorption kinetics. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and engineering aspects*, **88**(2-3), 251–266.
- [54] LI, YM, XU, GY, XIN, X, CAO, XR, & WU, D. 2008. Dilational surface viscoelasticity of hydroxypropyl methyl cellulose and CnTAB at air–water surface. *Carbohydrate polymers*, **72**(2), 211–221.
- [55] LUCASSEN, J, & VAN DEN TEMPEL, M\_. 1972. Dynamic measurements of dilational properties of a liquid interface. *Chemical Engineering Science*, **27**(6), 1283–1291.
- [56] LUCASSEN-REYNDERS, EH. 1966. Surface equation of state for ionized surfactants. *The Journal of Physical Chemistry*, **70**(6), 1777–1785.
- [57] LUCASSEN-REYNDERS, E.H., & VAN DEN TEMPEL, E.H. 1964. *Page 779 of : 4th International Congress on Surface Active Substances, Brussels, Gordon and Breach, New York*.
- [58] MALYSA, K., LUNKENHEIMER, K., MILLER, R., & HEMPT, C. 1985. Surface elasticity and dynamic stability of wet foams. *Colloids and Surfaces*, **16**(1), 9 – 20.
- [59] MANIKANTAN, HARISHANKAR, & SQUIRES, TODD M. 2020. Surfactant dynamics : hidden variables controlling fluid flows. *Journal of fluid mechanics*, **892**.
- [60] MARMOTTANT, PHILIPPE. 2001. *Atomisation d’un liquide par un courant gazeux*. Ph.D. thesis, Grenoble INPG.

- [61] MARMOTTANT, PHILIPPE, & VILLERMAUX, EMMANUEL. 2004. On spray formation. *Journal of fluid mechanics*, **498**, 73–111.
- [62] MARMOTTANT, PHILIPPE, VILLERMAUX, EMMANUEL, & CLANET, CHRISTOPHE. 2000. Transient Surface Tension of an Expanding Liquid Sheet. *Journal of Colloid and Interface Science*, **230**(1), 29 – 40.
- [63] MARTY, SYLVAIN, MATAS, JEAN-PHILIPPE, CARTELLIER, ALAIN H, & GLUCK, STÉPHANE. 2012. Measurements of droplet size in a two-phase mixing layer using an optical probe with new shape design. *Page 1256 of : ICLASS 2012*.
- [64] MARTY, SYLVAIN, MATAS, JEAN-PHILIPPE, & CARTELLIER, ALAIN. 2013. Study of a liquid–gas mixing layer : Shear instability and size of produced drops. *Comptes Rendus Mécanique*, **341**(1-2), 26–34.
- [65] MATAS, JEAN-PHILIPPE, MARTY, SYLVAIN, & CARTELLIER, ALAIN. 2011. Experimental and analytical study of the shear instability of a gas-liquid mixing layer. *Physics of fluids*, **23**(9), 094112.
- [66] MATAS, JEAN-PHILIPPE, DELON, ANTOINE, & CARTELLIER, ALAIN. 2018. Shear instability of an axisymmetric air–water coaxial jet. *Journal of Fluid Mechanics*, **843**, 575–600.
- [67] MERKUS, HENK G. 2009. *Particle size measurements : fundamentals, practice, quality*. Vol. 17. Springer Science & Business Media.
- [68] MONROY, F., KAHN, J. GIERMANSKA, & LANGEVIN, D. 1998. Dilational viscoelasticity of surfactant monolayers. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, **143**(2), 251 – 260.
- [69] MOVCHAN, TG, SOBOLEVA, IV, PLOTNIKOVA, EV, SHCHEKIN, AK, & RUSANOV, AI. 2012. Dynamic light scattering study of cetyltrimethylammonium bromide aqueous solutions. *Colloid Journal*, **74**(2), 239–247.
- [70] MOVCHAN, TG, RUSANOV, AI, SOBOLEVA, IV, KHLEBUNOVA, NR, PLOTNIKOVA, EV, & SHCHEKIN, AK. 2015. Diffusion coefficients of ionic surfactants with different molecular structures in aqueous solutions. *Colloid Journal*, **77**(4), 492–499.
- [71] ODIER, NICOLAS, BALARAC, GUILLAUME, & CORRE, CHRISTOPHE. 2018. Numerical analysis of the flapping mechanism for a two-phase coaxial jet. *International Journal of Multiphase Flow*, **106**, 164–178.
- [72] ONOFRI, FABRICE. 2004. Etat de l’art de la Granulométrie Laser en Mécanique des Fluides. *9ième Congrès Francophone de Vélocimétrie Laser. Bruxelles*.
- [73] PILCH, M, & ERDMAN, CA. 1987. Use of breakup time data and velocity history data to predict the maximum size of stable fragments for acceleration-induced breakup of a liquid drop. *International journal of multiphase flow*, **13**(6), 741–757.
- [74] RANA, D, NEALE, G, & HORNOF, V. 2002. Surface tension of mixed surfactant systems : lignosulfonate and sodium dodecyl sulfate. *Colloid and Polymer Science*, **280**(8), 775–778.
- [75] RAYLEIGH, LORD. 1880. On the stability, or instability, of certain fluid motions. *Proc. London Math. Soc.*, **9**, 57–70.
- [76] RAYNAL, LUDOVIC. 1997. *Instabilité et entraînement à l’interface d’une couche de mélange liquide-gaz*. Ph.D. thesis, Grenoble 1.

- [77] RITACCO, HERNAN, LANGEVIN, DOMINIQUE, DIAMANT, HAIM, & ANDELMAN, DAVID. 2011. Dynamic surface tension of aqueous solutions of ionic surfactants : role of electrostatics. *Langmuir*, **27**(3), 1009–1014.
- [78] SALKIN, LOUIS, SCHMIT, ALEXANDRE, PANIZZA, PASCAL, & COURBIN, LAURENT. 2016. Generating soap bubbles by blowing on soap films. *Physical review letters*, **116**(7), 077801.
- [79] SHAVIT, URI, & CHIGIER, NORMAN. 1995. The role of dynamic surface tension in air assist atomization. *Physics of Fluids*, **7**(1), 24–33.
- [80] SIJS, R, KOOLJ, S, & BONN, D. 2019. How surfactants influence the drop size in sprays. *arXiv preprint arXiv :1907.09723*.
- [81] STENVOT, C, & LANGEVIN, D. 1988. Study of viscoelasticity of soluble monolayers using analysis of propagation of excited capillary waves. *Langmuir*, **4**(5), 1179–1183.
- [82] STONE, H. A. 1990. A simple derivation of the time dependent convective diffusion equation for surfactant transport along a deforming interface. *Physics of Fluids A : Fluid Dynamics*, **2**(1), 111–112.
- [83] STUBENRAUCH, C., FAINERMAN, V. B., AKSENEKO, E. V., & MILLER, R. 2005. Adsorption Behavior and Dilational Rheology of the Cationic Alkyl Trimethylammonium Bromides at the Water/Air Interface. *The Journal of Physical Chemistry B*, **109**(4), 1505–1509.
- [84] SUYARI, M, & LEFEBVRE, A. 1986. Drop-size measurements in air-assist swirl atomizer sprays. *NASA-Levis Research Center, Cleveland*.
- [85] SVITOVA, TF, WETHERBEE, MJ, & RADKE, CJ. 2003. Dynamics of surfactant sorption at the air/water interface : continuous-flow tensiometry. *Journal of colloid and interface science*, **261**(1), 170–179.
- [86] THORPE, SA. 1971. Experiments on the instability of stratified shear flows : miscible fluids. *Journal of Fluid Mechanics*, **46**(2), 299–319.
- [87] TIMMERMANS, MARY-LOUISE E., & LISTER, JOHN R. 2002. The effect of surfactant on the stability of a liquid thread. *Journal of Fluid Mechanics*, **459**, 289–306.
- [88] VARGA, CHRISTOPHER M, LASHERAS, JUAN C, & HOPFINGER, EMIL J. 2003. Initial breakup of a small-diameter liquid jet by a high-speed gas stream. *Journal of Fluid Mechanics*, **497**, 405–434.
- [89] VILLERMAUX, EMMANUEL. 1993. *Auto-oscillation de melange dans les ecoulements recirculants*. Ph.D. thesis, Paris 6.
- [90] VILLERMAUX, EMMANUEL. 1998. Mixing and spray formation in coaxial jets. *Journal of propulsion and power*, **14**(5), 807–817.
- [91] VILLERMAUX, EMMANUEL. 2007. Fragmentation. *Annu. Rev. Fluid Mech.*, **39**, 419–446.
- [92] WARD, AFH, & TORDAI, L. 1946. Time-dependence of boundary tensions of solutions I. The role of diffusion in time-effects. *The Journal of Chemical Physics*, **14**(7), 453–461.
- [93] WEISS, MICHAEL, DARTON, RICHARD C, BATTAL, TURGUT, & BAIN, COLIN D. 2006. Surfactant adsorption and Marangoni flow in liquid jets. 3. Modeling in the presence of micellar surfactant. *Industrial & engineering chemistry research*, **45**(7), 2235–2248.



- [94] XUE, ZHENGJUN, CORVALAN, CARLOS M., DRAVID, VINEET, & SOJKA, PAUL E. 2008. Breakup of shear-thinning liquid jets with surfactants. *Chemical Engineering Science*, **63**(7), 1842 – 1849.
- [95] ZHAO, HUI, WU, ZHAO-WEI, LI, WEI-FENG, XU, JIAN-LIANG, & LIU, HAI-FENG. 2018. Transition Weber number between surfactant-laden drop bag breakup and shear breakup of secondary atomization. *Fuel*, **221**, 138–143.

## Résumé de la thèse

Si les mécanismes intervenant en atomisation assistée ont fait l'objet d'analyses détaillées, le rôle de tensioactifs sur ces processus n'a été que rarement abordé, de sorte que leur impact sur ces derniers reste très mal compris. C'est pourquoi l'atomisation d'un jet liquide (eau) dopé et entraîné par un courant gaz (air) coaxial est étudiée expérimentalement, sur de larges plages de vitesses d'injection. Trois tensioactifs aux propriétés variées ont été sélectionnés : utilisés à différentes concentrations, ils permettent d'explorer des temps caractéristiques de peuplement de l'interface allant de 10-3 à 1 seconde.

L'injecteur utilisé est constitué d'un tube liquide et d'un tube gaz coaxial, tous deux d'une section de 5 mm. Les vitesses d'injection liquide et gaz ont été variées respectivement de 0,1 à 0,9 m/s, et de 15 à 85 m/s. Un protocole de dépollution du circuit liquide après injection de tensioactifs a été mis en place, assurant la reproductibilité des mesures.

Dans un premier temps, nous avons caractérisé par analyse d'image la structure du jet liquide avant sa rupture, ainsi que les fréquences des instabilités intervenant dans la formation des gouttes. Il est montré que les candidats possédant un temps d'adsorption plus rapide que le temps de vie du jet liquide permettent un abaissement significatif de la tension de surface à son extrémité avant rupture, ce qui induit une augmentation significative de sa longueur. Le dopage avec tensioactifs à adsorption rapide conduit également à des changements du mode de brisure du jet liquide à faible vitesse d'injection gaz : d'une rupture de type Rayleigh, une majorité de brisures avec formation de membranes est observée due à la réduction de la tension de surface. Il est ensuite montré que les fréquences des instabilités de cisaillement et de battement du jet liquide ne sont affectées par aucun tensioactif, car ces mécanismes ne dépendent pas de la tension de surface.

Puis les caractéristiques des gouttes résultant de l'atomisation du jet liquide ont été étudiées à l'aide de trois techniques : la granulométrie par diffraction laser, l'imagerie et la sonde optique Doppler. La sonde optique Doppler est une technique nouvelle, et a donc nécessité des développements et des optimisations des procédures de traitement du signal. Des comparaisons entre débits liquides mesurés par la sonde optique et à l'injection fournissent des écarts inférieurs à 20%, y compris dans des sprays très denses, démontrant la fiabilité de l'instrument pour une utilisation en atomisation.

Enfin, le spray a été caractérisé en présence de tensioactifs. La diffraction laser est notamment utilisée pour quantifier l'évolution de la taille des gouttes avec la distance axiale à l'injecteur et avec la vitesse gaz. Les distributions de tailles issues de ces mesures indiquent que les tensioactifs ayant un impact sur la structure du jet induisent une plus forte présence de gouttes de faibles tailles qu'en eau pure. Nous montrons que ce phénomène a lieu lorsque le temps d'adsorption du tensioactif est plus court que le temps de rupture des ligaments formés à l'interface du jet.

Ainsi, le paramètre gouvernant au premier ordre l'influence d'un tensioactif sur l'atomisation est le temps d'adsorption, qui dépend de la nature du tensioactif et de sa concentration. Si ce temps est faible devant les temps caractéristiques des mécanismes à l'œuvre dans l'atomisation du jet liquide, sa structure est impactée, ainsi que le spray résultant de sa fragmentation. L'ensemble de ces résultats, ainsi que les éléments de compréhension des mécanismes à l'œuvre apportés, permettent d'envisager l'utilisation des tensioactifs dans des perspectives de contrôle du spray en atomisation.

## Thesis abstract

If the mechanisms involved in assisted atomization have been subject to detailed analysis, the role of surfactants on these processes has rarely been addressed, so that their impact on these processes is still poorly understood. This is why the atomization of a liquid jet (water) doped and driven by a coaxial gas stream (air) is experimentally studied, over a wide range of injection speeds. Three surfactants with different properties have

been selected : used at different concentrations, they allow to explore characteristic times of adsorption to the interface ranging from 10<sup>-3</sup> to 1 second. The injector used consists of a liquid tube and a coaxial gas tube, both with a section of 5 mm. The liquid and gas injection velocities were varied respectively from 0.1 to 0.9 m/s, and from 15 to 85 m/s. A decontamination protocol of the liquid circuit after surfactant injection was set up, ensuring the reproducibility of the measurements.

We first characterized by image analysis the structure of the liquid jet before its rupture, as well as the frequencies of instabilities involved in the formation of drops. It is shown that the candidates with an adsorption time faster than the life time of the liquid jet allow a significant lowering of the surface tension at its end before breakup, which induces a significant increase in its length. The doping with fast adsorbing surfactants also leads to changes in the breaking mode of the liquid jet at low gas injection velocity : from a Rayleigh-type rupture, a majority of breaks with membrane formation is observed due to the reduction of the surface tension. It is then shown that the frequencies of shear and flapping instabilities of the liquid jet are not affected by any surfactant, since these mechanisms do not depend on the surface tension.

Then the characteristics of the drops resulting from the atomization of the liquid jet were studied using three techniques : laser diffraction for particle size analysis, imaging and optical Doppler probe. The optical Doppler probe is a new technique, and therefore required development and optimization of signal processing procedures. Comparisons between liquid flow rates measured by the optical probe and at injection provide deviations of less than 20%, including in very dense sprays, showing the reliability of the instrument for use in atomization. Finally, the spray has been characterized in the presence of surfactants. Laser diffraction is used to quantify the evolution of the droplet size with the axial distance to the injector and with the gas velocity. The size distributions obtained from these measurements indicate that surfactants that have an impact on the jet structure induce a higher presence of small drops than in pure water. We show that this phenomenon takes place when the adsorption time of the surfactant is shorter than the breakup time of the ligaments resulting from the peeling of the jet interface.

Thus, the parameter governing at first order the influence of a surfactant on atomization is the adsorption time, which depends on its nature and its concentration. If this time is low compared to the characteristic times of the mechanisms at work in the atomization of the liquid jet, its structure is impacted, as well as the spray resulting from its fragmentation. Those results, as well as the elements of understanding of the mechanisms at work, allow us to consider the use of surfactants for spray control in atomization.